

16.11.2004

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

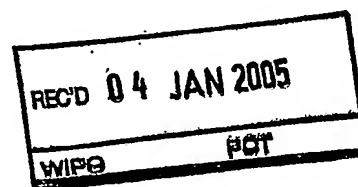
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 4 年 1 0 月 1 3 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 4 - 2 9 8 5 0 1
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 4 - 2 9 8 5 0 1]

出 願 人 キヤノン株式会社
Applicant(s):

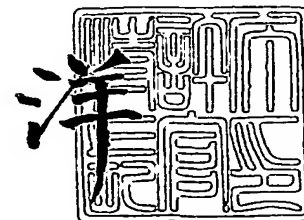


**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 2 月 1 7 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 1 1 5 8 0 6

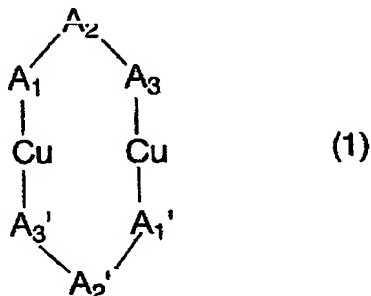
【書類名】 特許願
【整理番号】 0007982-01
【提出日】 平成16年10月13日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H05B 33/00
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
 【氏名】 坪山 明
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
 【氏名】 鎌谷 淳
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
 【氏名】 古郡 学
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
 【氏名】 岡田 伸二郎
【発明者】
 【住所又は居所】 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 キヤノン株式会社内
 【氏名】 滝口 隆雄
【特許出願人】
 【識別番号】 000001007
 【氏名又は名称】 キヤノン株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100096828
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 渡辺 敬介
 【電話番号】 03-3501-2138
【選任した代理人】
 【識別番号】 100110870
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 山口 芳広
 【電話番号】 03-3501-2138
 【連絡先】 担当
【先の出願に基づく優先権主張】
 【出願番号】 特願2003-401821
 【出願日】 平成15年12月 1日
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 004938
 【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 0101029

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

下記一般式 (1) で示される部分構造式を有する 2 核の銅配位化合物を発光材料として用いることを特徴とする発光素子。

【化 1】

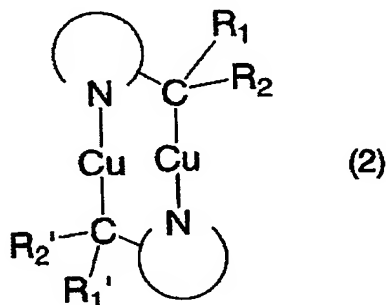


[式中、Cu は銅イオンであり、 $A_1 \sim A_3$ と $A_1' \sim A_3'$ は窒素、炭素、りん原子から選ばれる。]

【請求項 2】

前記銅配位化合物が、下記一般式 (2) で示されることを特徴とする請求項 1 に記載の発光素子。

【化 2】

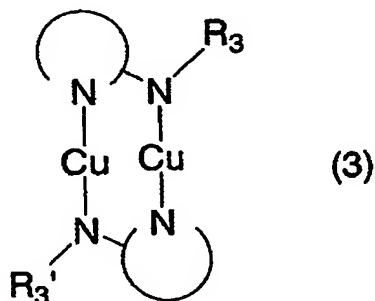


[式中、 R_1 , R_2 , R_1' , R_2' は、水素原子がハロゲンに置換されても良い炭素数 10 以下の分岐または直鎖状のアルキル基、置換基を有しても良い芳香環基、トリメチルシリル基、置換されても良いジアルキルアミノ基またはジアリールアミノ基であり、同じでも異なっても良い。N は、複素芳香環中のイミン基であり、該複素芳香環は、置換基を有しても良いピリジン環、ピリダジン環、ピラジン環、ピリミジン環、キノリン環、イソキノリン環、ピラゾール環、アザキノリン環、アザイソキノリン環から選ばれる。]

【請求項 3】

前記銅配位化合物が、下記一般式 (3) で示されることを特徴とする請求項 1 に記載の発光素子。

【化 3】

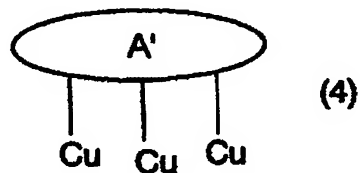


[式中、 R_3 、 R_3' は、水素原子がハロゲンに置換されても良い炭素数10以下の分岐または直鎖状のアルキル基、置換基を有しても良い芳香環基またはトリメチルシリル基であり、同じでも異なっても良い。Nは、複素芳香環中のイミン基であり、該複素芳香環は、置換基を有しても良いピリジン環、ピリダジン環、ピラジン環、ピリミジン環、キノリン環、イソキノリン環、ピラゾール環、アザキノリン環、アザイソキノリン環から選ばれる。]

【請求項4】

下記一般式(4)で示される部分構造式を有する3核の銅配位化合物を発光材料として用いることを特徴とする発光素子。

【化4】

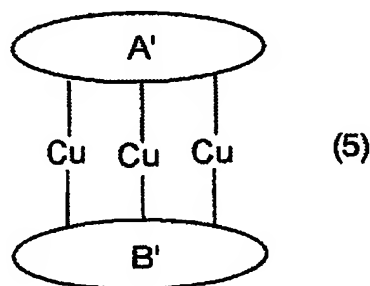


[式中、 Cu は銅イオンであり、 A' は3座配位子である。]

【請求項5】

前記銅配位化合物が、下記一般式(5)で示される部分構造式を有することを特徴とする請求項4に記載の発光素子。

【化5】

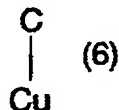


[式中、 B' は3座配位子であり、 A' と同じでも異なっても良い。]

【請求項6】

前記銅配位化合物が、下記一般式(6)で示される部分構造式を有することを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の発光素子。

【化6】



【請求項7】

前記銅配位化合物の銅原子間隔が3.2オングストローム以下であることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載の発光素子。

【請求項8】

前記銅配位化合物の銅が一価のイオンであることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載の発光素子。

【請求項9】

発光層が前記銅配位化合物 1 0 0 % の部分を含むことを特徴とする請求項 1 ～ 8 のいずれかに記載の発光素子。

【書類名】明細書

【発明の名称】発光素子

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機化合物を用いた発光素子に関するものであり、さらに詳しくは、金属配位化合物を発光材料として用いることで安定した効率の高い発光素子に関するものである。

【背景技術】

【0002】

有機EL素子は、高速応答性や高効率の発光素子として、応用研究が精力的に行われている（非特許文献1）。

【0003】

銅配位化合物は、原料が安価なため、比較的安価に製造することが可能であり、銅配位化合物の性能を十分に引き出せば低コスト高性能な有機EL素子が可能になる。

【0004】

特許文献1、非特許文献2には、銅配位化合物を用いた有機EL素子が開示されている。しかしながら、これらのEL素子は、発光効率が著しく低く、素子の効率の記載が不十分であり、銅配位化合物の特性が十分に引き出せているとは考えにくく、ディスプレイや照明などに用いるには十分な性能のものではない。

【0005】

また、非特許文献2に用いられている銅配位化合物の発光材料の分子量が1600以上あり、分子量が大きすぎて昇華性が悪く、真空蒸着には、不向きである。

【0006】

また、非特許文献3～5には、本発明の一部の化合物と同じ構造を有する銅配位化合物が開示されているが、発光に関しては記載が全くない。

【0007】

非特許文献6には、本発明の銅配位化合物とは異なる3核の銅配位化合物に関する記載があり、それは発光性を有し、有機LEDへの応用が示唆されている。この銅原子は、分子内の銅原子間距離が3.22Å程度であり銅原子間の相互作用が強くない。この3核銅配位化合物は、蒸着は可能であるが、素子の発光特性（効率）や安定性は悪い。

【0008】

【特許文献1】特許第2940514号公報

【非特許文献1】Macromol. Symp. 125, 1~48 (1997)

【非特許文献2】Advanced materials 1999 11 No1
0 p852 Y. Ma et al.

【非特許文献3】Journal of Chemical Society Dalton Transaction 1991 p2859

【非特許文献4】Journal of Chemical Society Dalton Transaction 1983 p1419

【非特許文献5】Journal of Chemical Society Dalton Transaction 2001 p3069

【非特許文献6】Journal of American Chemical Society, 2003 125 (40) p12072

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は、高発光効率・高安定性・低コストである発光材料を用いた発光素子を提供することを目的とする。

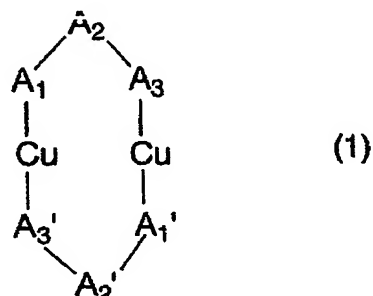
【課題を解決するための手段】

【0010】

すなわち、本発明の一の発光素子は、下記一般式(1)で示される部分構造式を有する2核の銅配位化合物を発光材料として用いることを特徴とし、前記銅配位化合物が、下記一般式(2)、(3)で示される部分構造式を有することが好ましい。

【0011】

【化1】

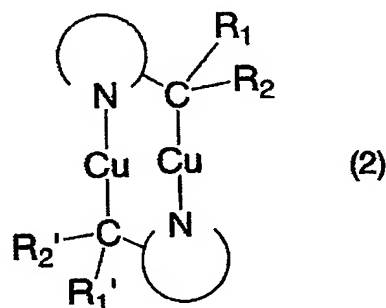


【0012】

[式中、Cuは銅イオンであり、A₁～A₃とA₁'～A₃'は窒素、炭素、りん原子から選ばれる。]

【0013】

【化2】

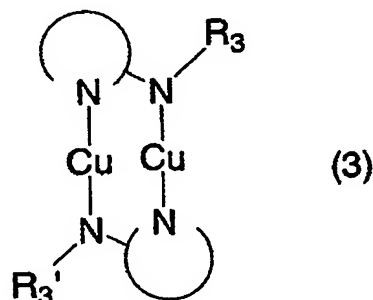


【0014】

[式中、R₁、R₂、R₁'、R₂'は、水素原子がハロゲンに置換されても良い炭素数10以下の分岐または直鎖状のアルキル基、置換基を有しても良い芳香環基、トリメチルシリル基、置換されても良いジアルキルアミノ基またはジアリールアミノ基であり、同じでも異なっても良い。Nは、複素芳香環中のイミン基であり、その複素芳香環は、置換基を有しても良いピリジン環、ピリダジン環、ピラジン環、ピリミジン環、キノリン環、イソキノリン環、ピラゾール環、アザキノリン環、アザイソキノリン環から選ばれる。]

【0015】

【化3】



【0016】

[式中、R₃、R₃'は、水素原子がハロゲンに置換されても良い炭素数10以下の分岐ま

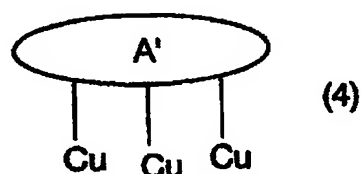
たは直鎖状のアルキル基、置換基を有しても良い芳香環基またはトリメチルシリル基であり、同じでも異なっても良い。Nは、複素芳香環中のイミン基であり、該複素芳香環は、置換基を有しても良いピリジン環、ピリダジン環、ピラジン環、ピリミジン環、キノリン環、イソキノリン環、ピラゾール環、アザキノリン環、アザイソキノリン環から選ばれる。]

【0017】

本発明の他の発光素子は、下記一般式(4)で示される部分構造式を有する3核の銅配位化合物を発光材料として用いることを特徴とし、前記銅配位化合物が、下記一般式(5)で示される部分構造式を有することが好ましい。

【0018】

【化4】

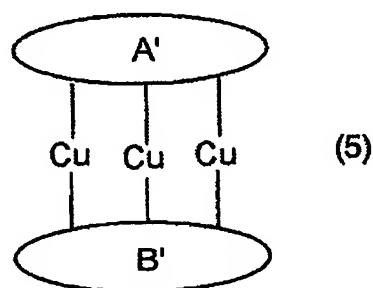


【0019】

[式中、Cuは銅イオンであり、A'は3座配位子である。]

【0020】

【化5】



【0021】

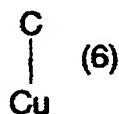
[式中、B'は3座配位子であり、A'と同じでも異なっても良い。]

【0022】

上記本発明の発光素子においては、前記銅配位化合物が、下記一般式(6)で示される部分構造式を有することが好ましい。

【0023】

【化6】



【0024】

また、前記銅配位化合物の銅原子間隔が3.2オングストローム以下であることが好ましい。

【0025】

また、前記銅配位化合物の銅が一価のイオンであることが好ましい。

【0026】

また、発光層が前記銅配位化合物 100% の部分を含むことが好ましい。

【発明の効果】

【0027】

本発明で用いる銅配位化合物は、高い発光効率を有するのみならず、真空蒸着プロセスや溶液にして塗布するスピンコートプロセスや、インクジェットノズルを用いた塗布方式にも適するし、素子作成工程における分解などのダメージがなく安定した素子作成が可能になる。そのため、本発明の発光素子は、高発光効率・高安定性を示すと共に、低コストで製造可能である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0028】

以下、本発明について詳細に説明する。

【0029】

まず、本発明の発光材料である銅配位化合物の特徴から説明する。

【0030】

本発明に用いる銅配位化合物は、上記一般式 (1) または (4) で示される部分構造式を有する銅配位化合物、即ち複数の 2 座配位子に 2 個の銅原子が結合した 2 核の銅配位化合物、或いは 1 つまたは複数の 3 座配位子に 3 個の銅原子が結合した 3 核の銅配位化合物であるが、これらの範疇に含まれる銅配位化合物は、熱的に安定で、高い発光効率を示し発光材料に適している。特に固体粉末状態において他の化合物と比べ強い発光を示すことが特徴である。

【0031】

一般には希薄溶液で強く発光する化合物でも固体粉末状態においては、発光が極端に弱くなる物が多い。これらは、発光材料分子間の相互作用によって、基底状態において会合体を形成する、あるいは、励起会合体を形成し、本来の発光特性が得られなくなる現象であり、これは「濃度消光」現象として知られている。

【0032】

本発明における Cu 配位化合物は、濃度消光を受けにくい発光材料といえる。従って、発光素子中の発光層を考えると、一般には、ホスト材料中に発光材料を少量ゲスト材料として加えることで濃度消光を回避するのであるが、本発明の銅配位化合物は濃度消光の制約がないため、濃度を濃くする、あるいは、100% の発光層を形成することができ、その結果、高い発光効率を有し、かつ、生産性のよい発光素子を製造することができる。また発光特性の濃度依存性が小さいため、生産ばらつきなどが抑えられ、この観点からも生産性の高い発光素子を作成することが可能である。

【0033】

ここで、中心金属の銅イオンはプラス 1 価のものをを用いることが好ましい。銅原子の電子配置から考えると、プラス 1 価の銅は、d 電子が 10 個含まれる。一般に、遷移金属で偶数個の d 電子の場合には、良好な発光特性を示す場合が多い。

【0034】

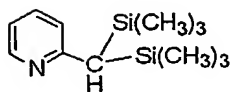
また、真空蒸着法は、安定で膜質の良い薄膜を作成できるため、有機 LED 素子の作成方法として一般によく用いられるが、我々の実験から、分子量が大きくなると、昇華性が落ち、この蒸着法を用いることができない。そこで、真空蒸着を可能にするために、本発明の銅配位化合物の分子量は 1500 以下が好ましく、1200 以下がより好ましい。

【0035】

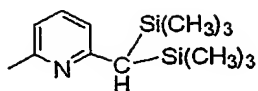
本発明に用いることのできる配位子の化学構造式を以下に示す [但し、下記基本構造は、縮合環基または置換基を有しても良い。該置換基は、ハロゲン原子、直鎖状、分岐状または環状のアルキル基、または、置換基を有しても良い芳香環基である。前記アルキル基の CH₂ 基は、-O- または -NR- (R はアルキル基または、置換されても良い芳香環基) に置換されても良く、また、H 原子は芳香環基またはハロゲン原子に置換されても良い。]。

【0036】

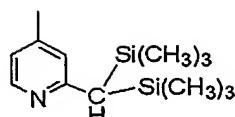
【化7】



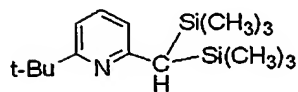
A01



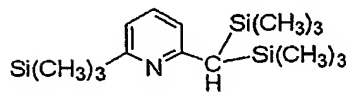
A02



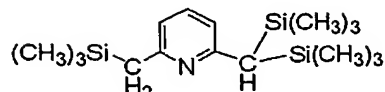
A03



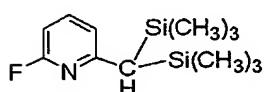
A04



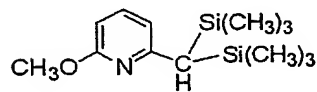
A05



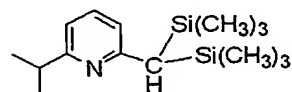
A06



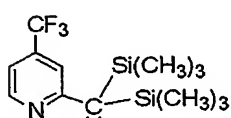
A07



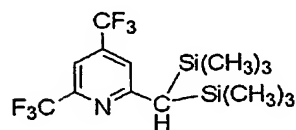
A08



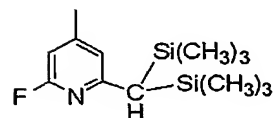
A09



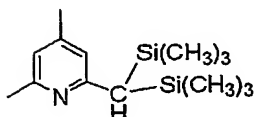
A10



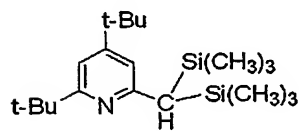
A11



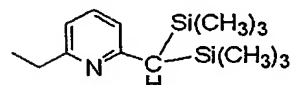
A12



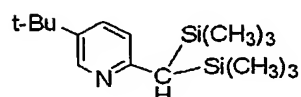
A13



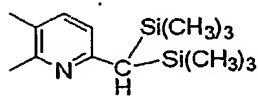
A14



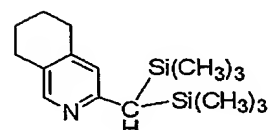
A15



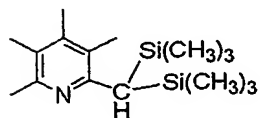
A16



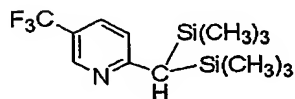
A17



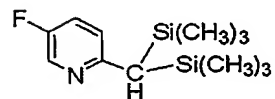
A18



A19



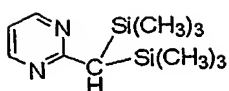
A20



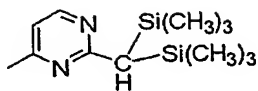
A21

【0037】

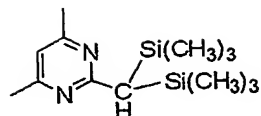
【化 8】



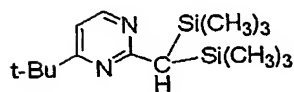
B01



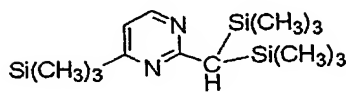
B02



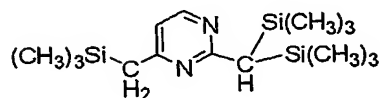
B03



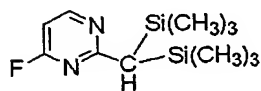
B04



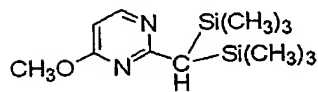
B05



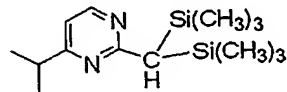
B06



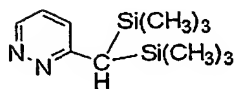
B07



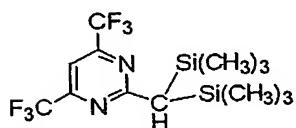
B08



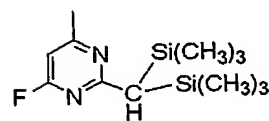
B09



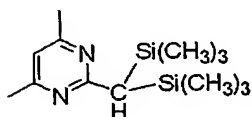
B10



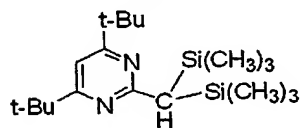
B11



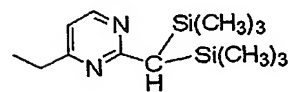
B12



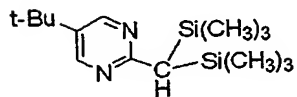
B13



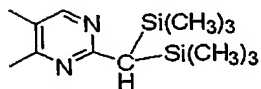
B14



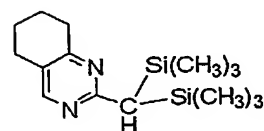
B15



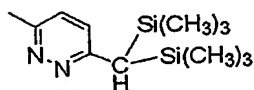
B16



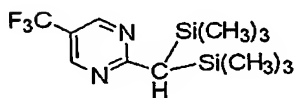
B17



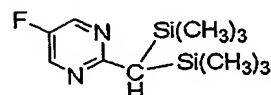
B18



B19



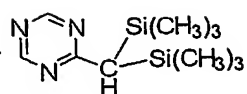
B20



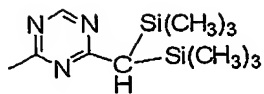
B21

【0038】

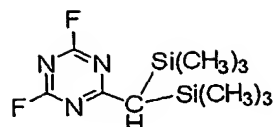
【化 9】



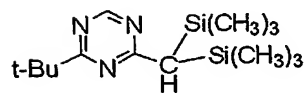
C01



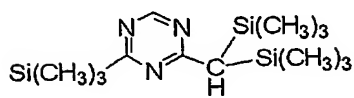
C02



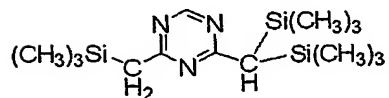
C03



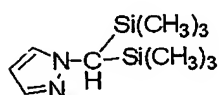
C04



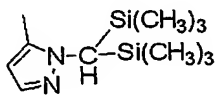
C05



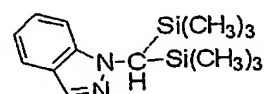
C06



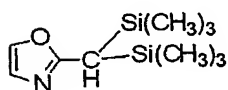
C07



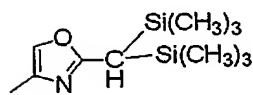
C08



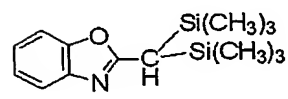
C09



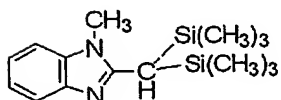
C10



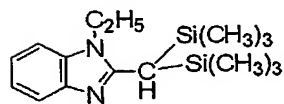
C11



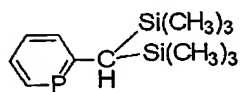
C12



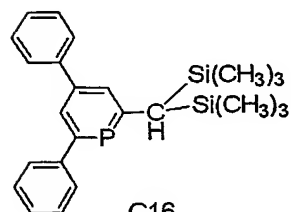
C13



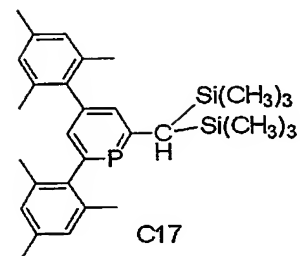
C14



C15



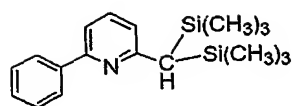
C16



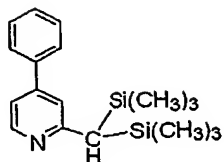
C17

【0039】

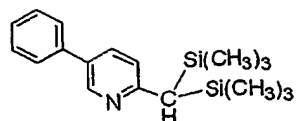
【化 10】



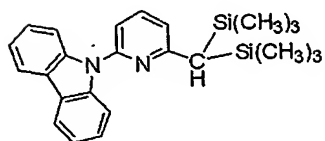
D01



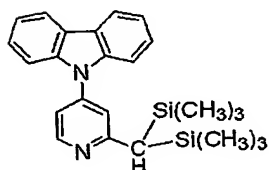
D02



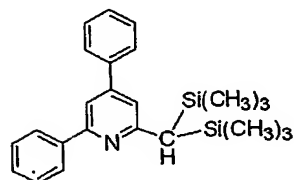
D03



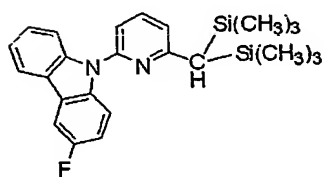
D04



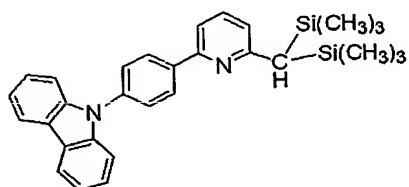
D05



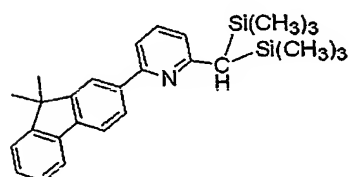
D06



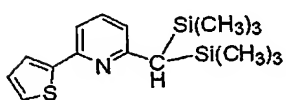
D07



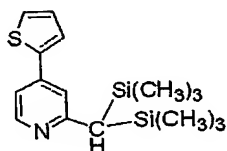
D08



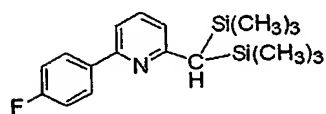
D09



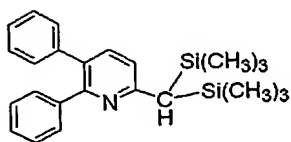
D10



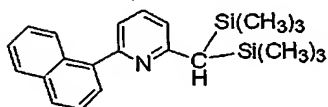
D11



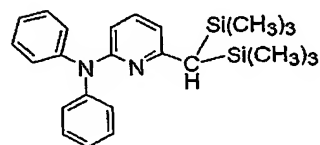
D12



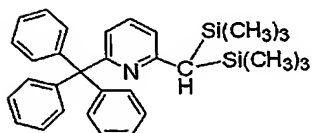
D13



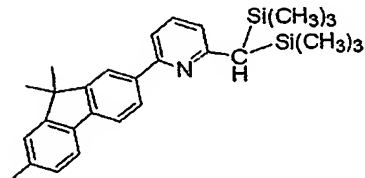
D14



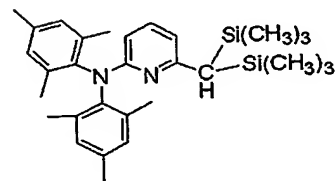
D15



D16



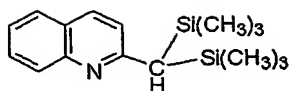
D17



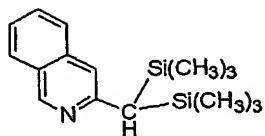
D18

【0040】

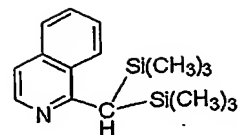
【化 1 1】



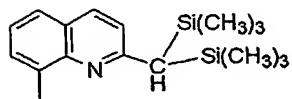
E01



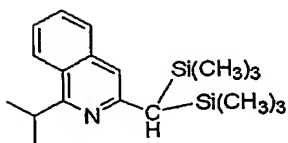
E02



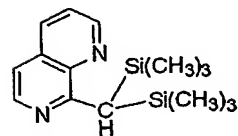
E03



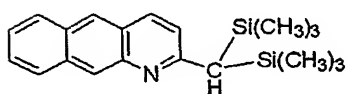
E04



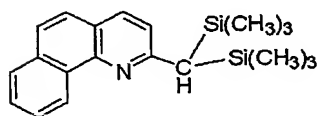
E05



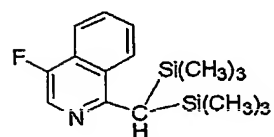
E06



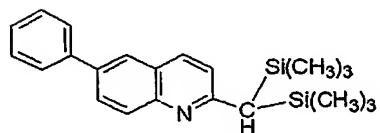
E07



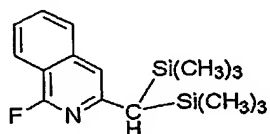
E08



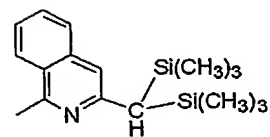
E09



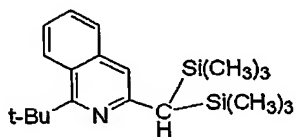
E10



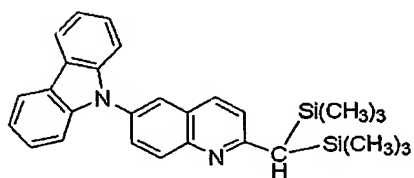
E11



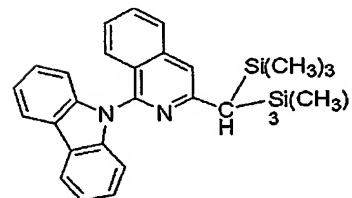
E12



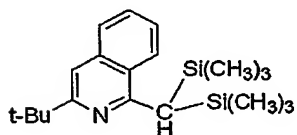
E13



E14



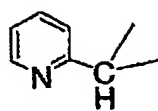
E15



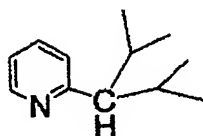
E16

【0 0 4 1】

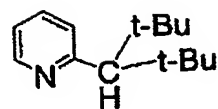
【化12】



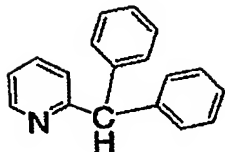
F01



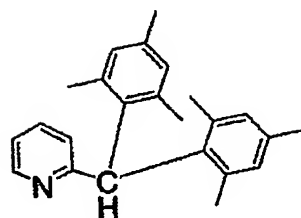
F02



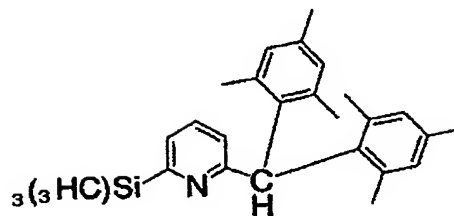
F03



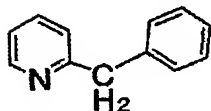
F04



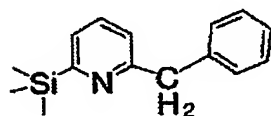
F05



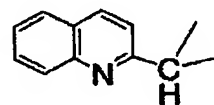
F06



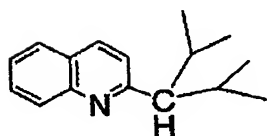
F07



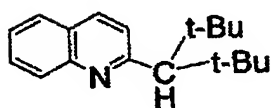
F08



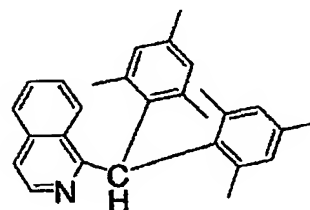
F09



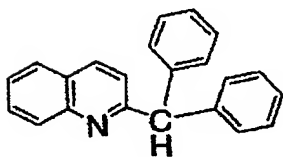
F10



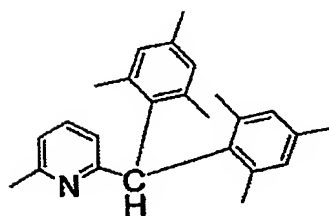
F11



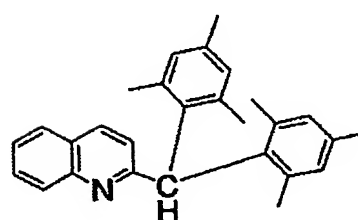
F12



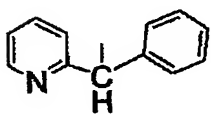
F13



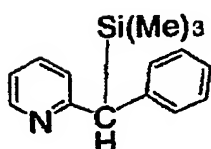
F14



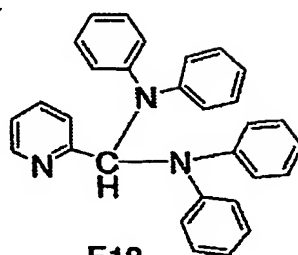
F15



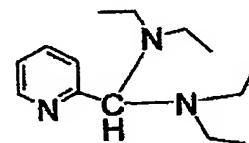
F16



F17



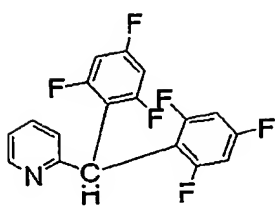
F18



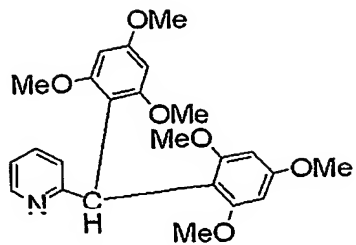
F19

【0042】

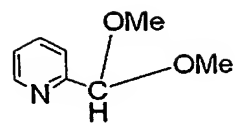
【化 13】



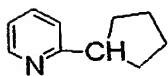
G01



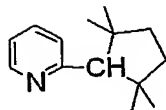
G02



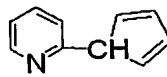
G03



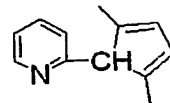
G04



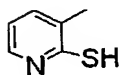
G05



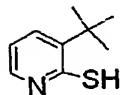
G06



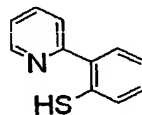
G07



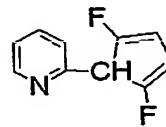
G08



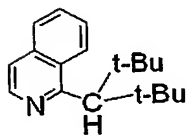
G09



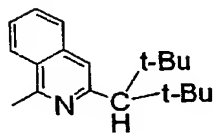
G10



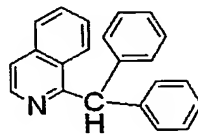
G11



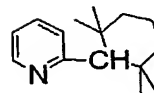
G12



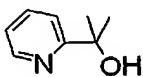
G13



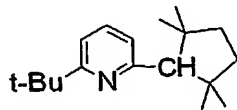
G14



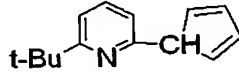
G15



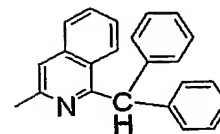
G16



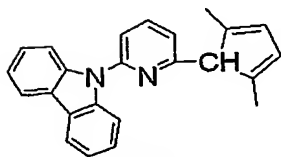
G17



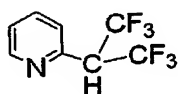
G18



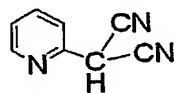
G19



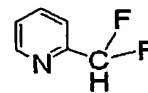
G20



G21



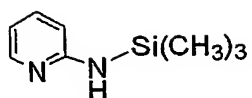
G22



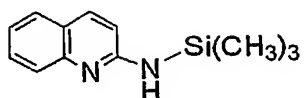
G23

【0043】

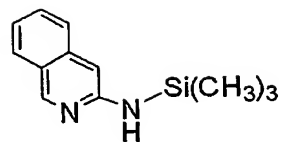
【化 14】



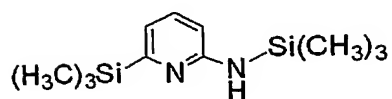
H01



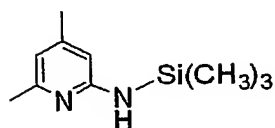
H02



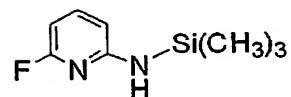
H03



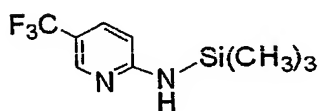
H04



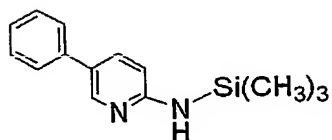
H05



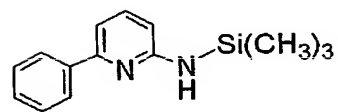
H06



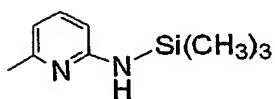
H07



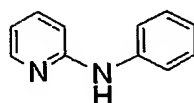
H08



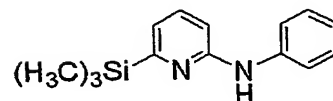
H09



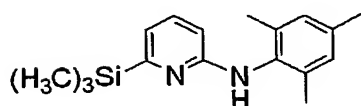
H10



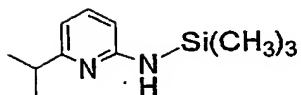
H11



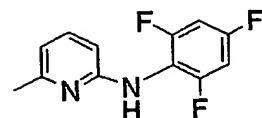
H12



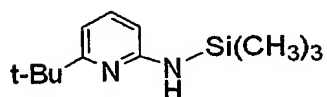
H13



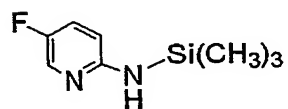
H14



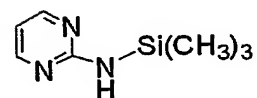
H15



H16



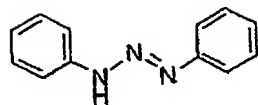
H17



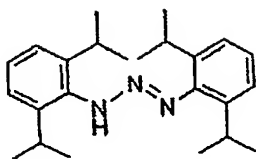
H18

【0044】

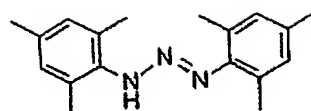
【化15】



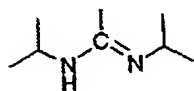
101



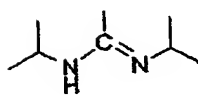
102



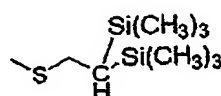
103



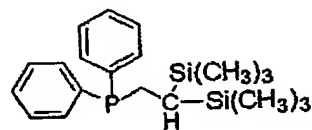
104



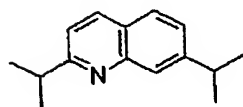
105



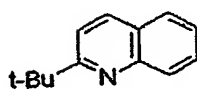
106



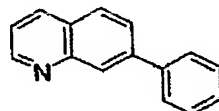
107



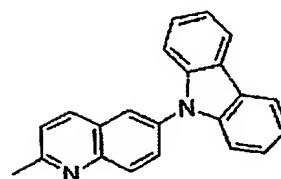
108



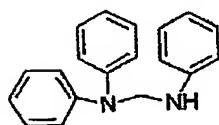
109



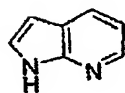
110



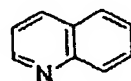
111



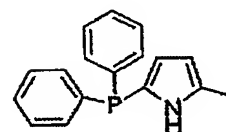
112



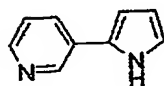
113



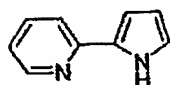
114



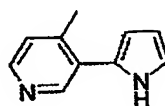
115



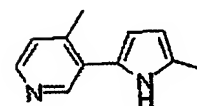
116



117



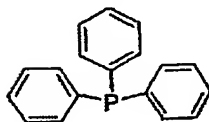
118



119



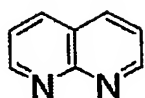
120



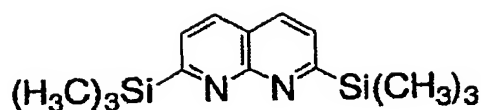
121

【0045】

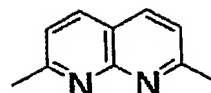
【化 16】



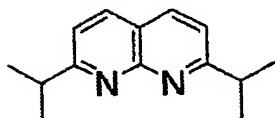
J01



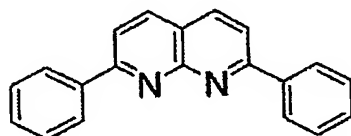
J02



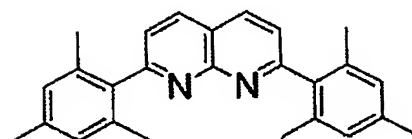
J03



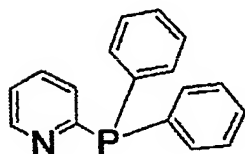
J04



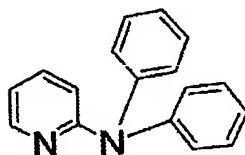
J05



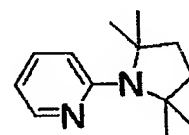
J06



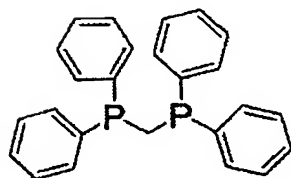
J07



J08



J09



J10

【0046】

化7～化15に示した配位子は、構造式中に示した「CH」または「NH」の水素原子が引き抜かれ、マイナス1価の2座配位子となり、水素原子が引き抜かれた窒素原子または炭素原子が銅原子に対する配位原子となる。また、化16に示した配位子は0価なので配位化合物全体ではプラス2価の配位化合物であり、これらイオン性の配位化合物の場合、カウンターアニオンとして、 PF_6^- 、 ClO_4^- 、 BF_4^- 、ハロゲンイオンなどを用いることができる。なお、例えば化7～化16に示した2つの2座配位子を共有結合で結んだ4座配位子も本発明の配位子として用いることができる。

【0047】

次に、本発明の銅配位化合物の具体例を表1～表7及び化17に示す。表1～表7において、Aは一方の配位子（一般式(1)の $-\text{A}_1-\text{A}_2-\text{A}_3-$ ）を、Bは他方の配位子（一般式(1)の $-\text{A}_1'-\text{A}_2'-\text{A}_3'-$ ）を表し、表中の符号は、上記配位子を表す。表1、表2については配位子A、Bの構造が同じ配位化合物、表3～表7については配位子A、Bの構造が異なる配位化合物、化17については3核の配位化合物を示す。

【0048】

【表 1】

| 化合物番号 | A and B |
|-------|---------|
| 1001 | A01 |
| 1002 | A02 |
| 1003 | A03 |
| 1004 | A04 |
| 1005 | A05 |
| 1006 | A06 |
| 1007 | A07 |
| 1008 | A08 |
| 1009 | A09 |
| 1010 | A10 |
| 1011 | A11 |
| 1012 | A12 |
| 1013 | A13 |
| 1014 | A14 |
| 1015 | A15 |
| 1016 | A16 |
| 1017 | A17 |
| 1018 | A18 |
| 1019 | A19 |
| 1020 | A20 |
| 1021 | A21 |
| 1022 | B01 |
| 1023 | B02 |
| 1024 | B03 |
| 1025 | B04 |
| 1026 | B05 |
| 1027 | B06 |
| 1028 | B07 |
| 1029 | B08 |
| 1030 | B09 |
| 1031 | B10 |
| 1032 | B11 |
| 1033 | B12 |
| 1034 | B13 |
| 1035 | B14 |
| 1036 | B15 |
| 1037 | B16 |
| 1038 | B17 |
| 1039 | B18 |
| 1040 | B19 |
| 1041 | B20 |
| 1042 | B21 |
| 1043 | C01 |
| 1044 | C02 |
| 1045 | C03 |
| 1046 | C04 |
| 1047 | C05 |
| 1048 | C06 |
| 1049 | C07 |
| 1050 | C08 |

| 化合物番号 | A and B |
|-------|---------|
| 1051 | C09 |
| 1052 | C10 |
| 1053 | C11 |
| 1054 | C12 |
| 1055 | C13 |
| 1056 | C14 |
| 1057 | C15 |
| 1058 | C16 |
| 1059 | C17 |
| 1060 | D01 |
| 1061 | D02 |
| 1062 | D03 |
| 1063 | D04 |
| 1064 | D05 |
| 1065 | D06 |
| 1066 | D07 |
| 1067 | D08 |
| 1068 | D09 |
| 1069 | D10 |
| 1070 | D11 |
| 1071 | D12 |
| 1072 | D13 |
| 1073 | D14 |
| 1074 | D15 |
| 1075 | D16 |
| 1076 | D17 |
| 1077 | D18 |
| 1078 | E01 |
| 1079 | E02 |
| 1080 | E03 |
| 1081 | E04 |
| 1082 | E05 |
| 1083 | E06 |
| 1084 | E07 |
| 1085 | E08 |
| 1086 | E09 |
| 1087 | E10 |
| 1088 | E11 |
| 1089 | E12 |
| 1090 | E13 |
| 1091 | E14 |
| 1092 | E15 |
| 1093 | E16 |
| 1094 | F01 |
| 1095 | F02 |
| 1096 | F03 |
| 1097 | F04 |
| 1098 | F05 |
| 1099 | F06 |
| 1100 | F07 |

| 化合物番号 | A and B |
|-------|---------|
| 1101 | F08 |
| 1102 | F09 |
| 1103 | F10 |
| 1104 | F11 |
| 1105 | F12 |
| 1106 | F13 |
| 1107 | F14 |
| 1108 | F15 |
| 1109 | F16 |
| 1110 | F17 |
| 1111 | G01 |
| 1112 | G02 |
| 1113 | G03 |
| 1114 | G04 |
| 1115 | G05 |
| 1116 | G06 |
| 1117 | G07 |
| 1118 | G08 |
| 1119 | G09 |
| 1120 | G10 |
| 1121 | G11 |
| 1122 | G12 |
| 1123 | G13 |
| 1124 | G14 |
| 1125 | G15 |
| 1126 | G16 |
| 1127 | G17 |
| 1128 | G18 |
| 1129 | G19 |
| 1130 | G20 |
| 1131 | G21 |
| 1132 | G22 |
| 1133 | G23 |
| 1134 | H01 |
| 1135 | H02 |
| 1136 | H03 |
| 1137 | H04 |
| 1138 | H05 |
| 1139 | H06 |
| 1140 | H07 |
| 1141 | H08 |
| 1142 | H09 |
| 1143 | H10 |
| 1144 | H11 |
| 1145 | H12 |
| 1146 | H13 |
| 1147 | H14 |
| 1148 | H15 |
| 1149 | H16 |
| 1150 | H17 |

【0049】

【表 2】

| 化合物番号 | A and B |
|-------|---------|
| 1151 | I1 |
| 1152 | I2 |
| 1153 | I3 |
| 1154 | I4 |
| 1155 | I5 |
| 1156 | I6 |
| 1157 | I7 |
| 1158 | I8 |
| 1159 | I9 |
| 1160 | I10 |
| 1161 | I11 |
| 1162 | I12 |
| 1163 | I13 |
| 1164 | I14 |
| 1165 | I15 |
| 1166 | I16 |
| 1167 | I17 |
| 1168 | I18 |
| 1169 | I19 |
| 1170 | J01 |
| 1171 | J02 |
| 1172 | J03 |
| 1173 | J04 |
| 1174 | J05 |
| 1175 | J06 |
| 1176 | J07 |
| 1177 | J08 |
| 1178 | J09 |
| 1179 | J10 |
| 1180 | F18 |
| 1181 | F19 |
| 1182 | I20 |

【0 0 5 0】

【表 3】

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2001 | A01 | A02 |
| 2002 | A01 | A04 |
| 2003 | A01 | A05 |
| 2004 | A01 | A06 |
| 2005 | A01 | A07 |
| 2006 | A01 | A09 |
| 2007 | A01 | A11 |
| 2008 | A01 | A12 |
| 2009 | A01 | A13 |
| 2010 | A01 | A14 |
| 2011 | A01 | A15 |
| 2012 | A01 | A21 |
| 2013 | A01 | B01 |
| 2014 | A01 | B02 |
| 2015 | A01 | B06 |
| 2016 | A01 | B11 |
| 2017 | A01 | B12 |
| 2018 | A01 | B20 |
| 2019 | A01 | C01 |
| 2020 | A01 | C02 |
| 2021 | A01 | C04 |
| 2022 | A01 | C05 |
| 2023 | A01 | C06 |
| 2024 | A01 | C07 |
| 2025 | A01 | C10 |
| 2026 | A01 | C11 |
| 2027 | A01 | C12 |
| 2028 | A01 | C13 |
| 2029 | A01 | C14 |
| 2030 | A01 | C16 |
| 2031 | A01 | C07 |
| 2032 | A01 | D01 |
| 2033 | A01 | D04 |
| 2034 | A01 | D06 |
| 2035 | A01 | D07 |
| 2036 | A01 | D08 |
| 2037 | A01 | D09 |
| 2038 | A01 | D15 |
| 2039 | A01 | D16 |
| 2040 | A01 | D17 |
| 2041 | A01 | D18 |
| 2042 | A01 | E03 |
| 2043 | A01 | E08 |
| 2044 | A01 | E11 |
| 2045 | A01 | E12 |
| 2046 | A01 | E13 |
| 2047 | A01 | E14 |
| 2048 | A01 | E15 |
| 2049 | A01 | E16 |
| 2050 | A01 | F01 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2051 | A01 | F03 |
| 2052 | A01 | F04 |
| 2053 | A01 | F05 |
| 2054 | A01 | F11 |
| 2055 | A01 | F14 |
| 2056 | A01 | F17 |
| 2057 | A01 | G01 |
| 2058 | A01 | G02 |
| 2059 | A01 | G03 |
| 2060 | A01 | G06 |
| 2061 | A01 | G12 |
| 2062 | A01 | G13 |
| 2063 | A01 | G15 |
| 2064 | A01 | G20 |
| 2065 | A01 | G21 |
| 2066 | A01 | G23 |
| 2067 | A01 | H01 |
| 2068 | A01 | H04 |
| 2069 | A01 | H10 |
| 2070 | A01 | H12 |
| 2071 | A01 | H14 |
| 2072 | A01 | H17 |
| 2073 | A01 | I01 |
| 2074 | A01 | I03 |
| 2075 | A01 | I14 |
| 2076 | A01 | I15 |
| 2077 | A01 | J01 |
| 2078 | A01 | J07 |
| 2079 | A01 | J10 |
| 2080 | A02 | A04 |
| 2081 | A02 | A05 |
| 2082 | A02 | A06 |
| 2083 | A02 | A07 |
| 2084 | A02 | A09 |
| 2085 | A02 | A11 |
| 2086 | A02 | A12 |
| 2087 | A02 | A13 |
| 2088 | A02 | A14 |
| 2089 | A02 | A15 |
| 2090 | A02 | A21 |
| 2091 | A02 | B01 |
| 2092 | A02 | B02 |
| 2093 | A02 | B10 |
| 2094 | A02 | B11 |
| 2095 | A02 | B12 |
| 2096 | A02 | B20 |
| 2097 | A02 | C01 |
| 2098 | A02 | C02 |
| 2099 | A02 | C04 |
| 2100 | A02 | C05 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2101 | A02 | C06 |
| 2102 | A02 | C07 |
| 2103 | A02 | C10 |
| 2104 | A02 | C11 |
| 2105 | A02 | C12 |
| 2106 | A02 | C13 |
| 2107 | A02 | C14 |
| 2108 | A02 | C16 |
| 2109 | A02 | C07 |
| 2110 | A02 | D01 |
| 2111 | A02 | D04 |
| 2112 | A02 | D06 |
| 2113 | A02 | D07 |
| 2114 | A02 | D08 |
| 2115 | A02 | D09 |
| 2116 | A02 | D15 |
| 2117 | A02 | D16 |
| 2118 | A02 | D17 |
| 2119 | A02 | D18 |
| 2120 | A02 | E03 |
| 2121 | A02 | E08 |
| 2122 | A02 | E11 |
| 2123 | A02 | E12 |
| 2124 | A02 | E13 |
| 2125 | A02 | E14 |
| 2126 | A02 | E15 |
| 2127 | A02 | E16 |
| 2128 | A02 | F01 |
| 2129 | A02 | F03 |
| 2130 | A02 | F04 |
| 2131 | A02 | F05 |
| 2132 | A02 | F11 |
| 2133 | A02 | F14 |
| 2134 | A02 | F17 |
| 2135 | A02 | G01 |
| 2136 | A02 | G02 |
| 2137 | A02 | G03 |
| 2138 | A02 | G06 |
| 2139 | A02 | G12 |
| 2140 | A02 | G13 |
| 2141 | A02 | G15 |
| 2142 | A02 | G20 |
| 2143 | A02 | G21 |
| 2144 | A02 | G23 |
| 2145 | A02 | H01 |
| 2146 | A02 | H04 |
| 2147 | A02 | H10 |
| 2148 | A02 | H12 |
| 2149 | A02 | H14 |
| 2150 | A02 | H17 |

【0051】

【表 4】

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2151 | A02 | I01 |
| 2152 | A02 | I03 |
| 2153 | A02 | I14 |
| 2154 | A02 | I15 |
| 2155 | A02 | J01 |
| 2156 | A02 | J07 |
| 2157 | A02 | J10 |
| 2158 | A03 | A09 |
| 2159 | A03 | A13 |
| 2160 | A03 | A18 |
| 2161 | A03 | A20 |
| 2162 | A03 | B01 |
| 2163 | A03 | B02 |
| 2164 | A03 | B10 |
| 2165 | A03 | B13 |
| 2166 | A03 | B19 |
| 2167 | A03 | C01 |
| 2168 | A03 | C06 |
| 2169 | A03 | C10 |
| 2170 | A03 | C14 |
| 2171 | A03 | C16 |
| 2172 | A03 | D04 |
| 2173 | A03 | D08 |
| 2174 | A03 | D09 |
| 2175 | A03 | D15 |
| 2176 | A03 | D16 |
| 2177 | A03 | D18 |
| 2178 | A03 | E02 |
| 2179 | A03 | E12 |
| 2180 | A03 | F03 |
| 2181 | A03 | F04 |
| 2182 | A03 | F14 |
| 2183 | A03 | F17 |
| 2184 | A03 | G01 |
| 2185 | A03 | G18 |
| 2186 | A03 | H01 |
| 2187 | A03 | H10 |
| 2188 | A03 | H14 |
| 2189 | A03 | I1 |
| 2190 | A03 | I15 |
| 2191 | A03 | J07 |
| 2192 | A04 | A05 |
| 2193 | A04 | A06 |
| 2194 | A04 | A07 |
| 2195 | A04 | A09 |
| 2196 | A04 | A11 |
| 2197 | A04 | A12 |
| 2198 | A04 | A13 |
| 2199 | A04 | A14 |
| 2200 | A04 | A15 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2201 | A04 | A21 |
| 2202 | A04 | B01 |
| 2203 | A04 | B02 |
| 2204 | A04 | B10 |
| 2205 | A04 | B11 |
| 2206 | A04 | B12 |
| 2207 | A04 | B20 |
| 2208 | A04 | C01 |
| 2209 | A04 | C02 |
| 2210 | A04 | C04 |
| 2211 | A04 | C05 |
| 2212 | A04 | C06 |
| 2213 | A04 | C07 |
| 2214 | A04 | C10 |
| 2215 | A04 | C11 |
| 2216 | A04 | C12 |
| 2217 | A04 | C13 |
| 2218 | A04 | C14 |
| 2219 | A04 | C16 |
| 2220 | A04 | C07 |
| 2221 | A04 | D01 |
| 2222 | A04 | D04 |
| 2223 | A04 | D06 |
| 2224 | A04 | D07 |
| 2225 | A04 | D08 |
| 2226 | A04 | D09 |
| 2227 | A04 | D15 |
| 2228 | A04 | D16 |
| 2229 | A04 | D17 |
| 2230 | A04 | D18 |
| 2231 | A04 | E03 |
| 2232 | A04 | E08 |
| 2233 | A04 | E11 |
| 2234 | A04 | E12 |
| 2235 | A04 | E13 |
| 2236 | A04 | E14 |
| 2237 | A04 | E15 |
| 2238 | A04 | E16 |
| 2239 | A04 | F01 |
| 2240 | A04 | F03 |
| 2241 | A04 | F04 |
| 2242 | A04 | F05 |
| 2243 | A04 | F11 |
| 2244 | A04 | F14 |
| 2245 | A04 | F17 |
| 2246 | A04 | G01 |
| 2247 | A04 | G02 |
| 2248 | A04 | G03 |
| 2249 | A04 | G06 |
| 2250 | A04 | G12 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2251 | A04 | G13 |
| 2252 | A04 | G15 |
| 2253 | A04 | G20 |
| 2254 | A04 | G21 |
| 2255 | A04 | G23 |
| 2256 | A04 | H01 |
| 2257 | A04 | H04 |
| 2258 | A04 | H10 |
| 2259 | A04 | H12 |
| 2260 | A04 | H14 |
| 2261 | A04 | H17 |
| 2262 | A04 | I01 |
| 2263 | A04 | I03 |
| 2264 | A04 | I14 |
| 2265 | A04 | I15 |
| 2266 | A04 | J01 |
| 2267 | A04 | J07 |
| 2268 | A04 | J10 |
| 2269 | A05 | A09 |
| 2270 | A05 | A13 |
| 2271 | A05 | A18 |
| 2272 | A05 | A20 |
| 2273 | A05 | B01 |
| 2274 | A05 | B02 |
| 2275 | A05 | B10 |
| 2276 | A05 | B13 |
| 2277 | A05 | B19 |
| 2278 | A05 | C01 |
| 2279 | A05 | C06 |
| 2280 | A05 | C10 |
| 2281 | A05 | C14 |
| 2282 | A05 | C16 |
| 2283 | A05 | D04 |
| 2284 | A05 | D08 |
| 2285 | A05 | D09 |
| 2286 | A05 | D15 |
| 2287 | A05 | D16 |
| 2288 | A05 | D18 |
| 2289 | A05 | E02 |
| 2290 | A05 | E12 |
| 2291 | A05 | F03 |
| 2292 | A05 | F04 |
| 2293 | A05 | F14 |
| 2294 | A05 | F17 |
| 2295 | A05 | G01 |
| 2296 | A05 | G18 |
| 2297 | A05 | H01 |
| 2298 | A05 | H10 |
| 2299 | A05 | H14 |
| 2300 | A05 | I1 |

【0052】

【表 5】

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2301 | A05 | I15 |
| 2302 | A05 | J07 |
| 2303 | A06 | A09 |
| 2304 | A06 | A13 |
| 2305 | A06 | A18 |
| 2306 | A06 | A20 |
| 2307 | A06 | B01 |
| 2308 | A06 | B02 |
| 2309 | A06 | B10 |
| 2310 | A06 | B13 |
| 2311 | A06 | B19 |
| 2312 | A06 | C01 |
| 2313 | A06 | C06 |
| 2314 | A06 | C10 |
| 2315 | A06 | C14 |
| 2316 | A06 | C16 |
| 2317 | A06 | D04 |
| 2318 | A06 | D08 |
| 2319 | A06 | D09 |
| 2320 | A06 | D15 |
| 2321 | A06 | D16 |
| 2322 | A06 | D18 |
| 2323 | A06 | E02 |
| 2324 | A06 | E12 |
| 2325 | A06 | F03 |
| 2326 | A06 | F04 |
| 2327 | A06 | F14 |
| 2328 | A06 | F17 |
| 2329 | A06 | G01 |
| 2330 | A06 | G18 |
| 2331 | A06 | H01 |
| 2332 | A06 | H10 |
| 2333 | A06 | H14 |
| 2334 | A06 | I1 |
| 2335 | A06 | I15 |
| 2336 | A06 | J07 |
| 2337 | A07 | A09 |
| 2338 | A07 | A12 |
| 2339 | A07 | B01 |
| 2340 | A07 | B05 |
| 2341 | A07 | B20 |
| 2342 | A07 | C14 |
| 2343 | A07 | C16 |
| 2344 | A07 | D04 |
| 2345 | A07 | D09 |
| 2346 | A07 | D15 |
| 2347 | A07 | E01 |
| 2348 | A07 | F04 |
| 2349 | A07 | G21 |
| 2350 | A07 | I15 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2351 | A08 | A09 |
| 2352 | A08 | A12 |
| 2353 | A08 | B01 |
| 2354 | A08 | B05 |
| 2355 | A08 | B20 |
| 2356 | A08 | C14 |
| 2357 | A08 | C16 |
| 2358 | A08 | D04 |
| 2359 | A08 | D09 |
| 2360 | A08 | D15 |
| 2361 | A08 | E03 |
| 2362 | A08 | F04 |
| 2363 | A08 | G21 |
| 2364 | A08 | I15 |
| 2365 | A09 | A11 |
| 2366 | A09 | A12 |
| 2367 | A09 | A13 |
| 2368 | A09 | A14 |
| 2369 | A09 | A15 |
| 2370 | A09 | A21 |
| 2371 | A09 | B01 |
| 2372 | A09 | B02 |
| 2373 | A09 | B10 |
| 2374 | A09 | B11 |
| 2375 | A09 | B12 |
| 2376 | A09 | B20 |
| 2377 | A09 | C01 |
| 2378 | A09 | C02 |
| 2379 | A09 | C04 |
| 2380 | A09 | C05 |
| 2381 | A09 | C06 |
| 2382 | A09 | C07 |
| 2383 | A09 | C10 |
| 2384 | A09 | C11 |
| 2385 | A09 | C12 |
| 2386 | A09 | C13 |
| 2387 | A09 | C14 |
| 2388 | A09 | C16 |
| 2389 | A09 | C07 |
| 2390 | A09 | D01 |
| 2391 | A09 | D04 |
| 2392 | A09 | D06 |
| 2393 | A09 | D07 |
| 2394 | A09 | D08 |
| 2395 | A09 | D09 |
| 2396 | A09 | D15 |
| 2397 | A09 | D16 |
| 2398 | A09 | D17 |
| 2399 | A09 | D18 |
| 2400 | A09 | E03 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2401 | A09 | E08 |
| 2402 | A09 | E11 |
| 2403 | A09 | E12 |
| 2404 | A09 | E13 |
| 2405 | A09 | E14 |
| 2406 | A09 | E15 |
| 2407 | A09 | E16 |
| 2408 | A09 | F01 |
| 2409 | A09 | F03 |
| 2410 | A09 | F04 |
| 2411 | A09 | F05 |
| 2412 | A09 | F11 |
| 2413 | A09 | F14 |
| 2414 | A09 | F17 |
| 2415 | A09 | G01 |
| 2416 | A09 | G02 |
| 2417 | A09 | G03 |
| 2418 | A09 | G06 |
| 2419 | A09 | G12 |
| 2420 | A09 | G13 |
| 2421 | A09 | G15 |
| 2422 | A09 | G20 |
| 2423 | A09 | G21 |
| 2424 | A09 | G23 |
| 2425 | A09 | H01 |
| 2426 | A09 | H04 |
| 2427 | A09 | H10 |
| 2428 | A09 | H12 |
| 2429 | A09 | H14 |
| 2430 | A09 | H17 |
| 2431 | A09 | I01 |
| 2432 | A09 | I03 |
| 2433 | A09 | I14 |
| 2434 | A09 | I15 |
| 2435 | A09 | J01 |
| 2436 | A09 | J07 |
| 2437 | A09 | J10 |
| 2438 | A13 | B01 |
| 2439 | A13 | B05 |
| 2440 | A13 | B20 |
| 2441 | A13 | C14 |
| 2442 | A13 | C16 |
| 2443 | A13 | D04 |
| 2444 | A13 | D09 |
| 2445 | A13 | D15 |
| 2446 | A13 | E03 |
| 2447 | A13 | F04 |
| 2448 | A13 | G21 |
| 2449 | A13 | I15 |
| 2450 | A13 | J07 |

【0053】

【表 6】

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2451 | B01 | B05 |
| 2452 | B01 | B09 |
| 2453 | B01 | C14 |
| 2454 | B01 | C16 |
| 2455 | B01 | D04 |
| 2456 | B01 | D09 |
| 2457 | B01 | D15 |
| 2458 | B01 | E03 |
| 2459 | B01 | F04 |
| 2460 | B01 | G21 |
| 2461 | B01 | I15 |
| 2462 | B01 | J07 |
| 2463 | B06 | B09 |
| 2464 | B06 | C14 |
| 2465 | B06 | C16 |
| 2466 | B06 | D04 |
| 2467 | B06 | D09 |
| 2468 | B06 | D15 |
| 2469 | B06 | E03 |
| 2470 | B06 | F04 |
| 2471 | B06 | G21 |
| 2472 | B06 | I15 |
| 2473 | B06 | J07 |
| 2474 | B13 | C14 |
| 2475 | B13 | C16 |
| 2476 | B13 | D04 |
| 2477 | B13 | D09 |
| 2478 | B13 | D15 |
| 2479 | B13 | E03 |
| 2480 | B13 | F04 |
| 2481 | B13 | G21 |
| 2482 | B13 | I15 |
| 2483 | B13 | J07 |
| 2484 | C01 | C02 |
| 2485 | C01 | C04 |
| 2486 | C01 | C16 |
| 2487 | C01 | D04 |
| 2488 | C01 | D09 |
| 2489 | C01 | D15 |
| 2490 | C01 | E03 |
| 2491 | C01 | F04 |
| 2492 | C01 | G21 |
| 2493 | C07 | C09 |
| 2494 | C07 | C16 |
| 2495 | C07 | D04 |
| 2496 | C07 | D09 |
| 2497 | C07 | D15 |
| 2498 | C07 | E03 |
| 2499 | C07 | F04 |
| 2500 | C07 | G21 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2501 | C14 | C16 |
| 2502 | C14 | D04 |
| 2503 | C14 | D06 |
| 2504 | C14 | D09 |
| 2505 | C14 | D16 |
| 2506 | C14 | E03 |
| 2507 | C14 | F04 |
| 2508 | C14 | G21 |
| 2509 | C16 | C17 |
| 2510 | C16 | D04 |
| 2511 | C16 | D06 |
| 2512 | C16 | D09 |
| 2513 | C16 | D16 |
| 2514 | C16 | E03 |
| 2515 | C16 | F04 |
| 2516 | C17 | D01 |
| 2517 | C17 | D04 |
| 2518 | C17 | D15 |
| 2519 | D04 | D07 |
| 2520 | D04 | D09 |
| 2521 | D04 | D15 |
| 2522 | D04 | D16 |
| 2523 | D04 | E03 |
| 2524 | D04 | E11 |
| 2525 | D04 | E12 |
| 2526 | D04 | F03 |
| 2527 | D04 | F05 |
| 2528 | D04 | F14 |
| 2529 | D04 | F17 |
| 2530 | D04 | G07 |
| 2531 | D04 | G11 |
| 2532 | D04 | G21 |
| 2533 | D04 | H05 |
| 2534 | D04 | H17 |
| 2535 | D04 | I14 |
| 2536 | D09 | D07 |
| 2537 | D09 | D09 |
| 2538 | D09 | D15 |
| 2539 | D09 | D16 |
| 2540 | D09 | E03 |
| 2541 | D09 | E11 |
| 2542 | D09 | E12 |
| 2543 | D09 | F03 |
| 2544 | D09 | F05 |
| 2545 | D09 | F14 |
| 2546 | D09 | F17 |
| 2547 | D09 | G07 |
| 2548 | D09 | G11 |
| 2549 | D09 | G21 |
| 2550 | D09 | H05 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2551 | D09 | H17 |
| 2552 | D09 | I14 |
| 2553 | D16 | D16 |
| 2554 | D16 | E03 |
| 2555 | D16 | E11 |
| 2556 | D16 | E12 |
| 2557 | D16 | F03 |
| 2558 | D16 | F05 |
| 2559 | D16 | F14 |
| 2560 | D16 | F17 |
| 2561 | D16 | G07 |
| 2562 | D16 | G11 |
| 2563 | D16 | G21 |
| 2564 | D16 | H05 |
| 2565 | D16 | H17 |
| 2566 | D16 | I14 |
| 2567 | E01 | E03 |
| 2568 | E01 | A01 |
| 2569 | E01 | A02 |
| 2570 | E01 | A09 |
| 2571 | E01 | E11 |
| 2572 | E01 | E12 |
| 2573 | E01 | F03 |
| 2574 | E01 | F05 |
| 2575 | E01 | F14 |
| 2576 | E01 | F17 |
| 2577 | E01 | G07 |
| 2578 | E01 | G11 |
| 2579 | E01 | G21 |
| 2580 | E01 | H05 |
| 2581 | E01 | H17 |
| 2582 | E01 | I14 |
| 2583 | E02 | A01 |
| 2584 | E02 | A02 |
| 2585 | E02 | A09 |
| 2586 | E03 | E11 |
| 2587 | E03 | E12 |
| 2588 | E03 | F03 |
| 2589 | E03 | F05 |
| 2590 | E03 | F14 |
| 2591 | E03 | F17 |
| 2592 | E03 | G07 |
| 2593 | E03 | G11 |
| 2594 | E03 | G21 |
| 2595 | E03 | H05 |
| 2596 | E03 | H17 |
| 2597 | E03 | I14 |
| 2598 | E05 | A01 |
| 2599 | E05 | A02 |
| 2600 | E05 | A09 |

【0054】

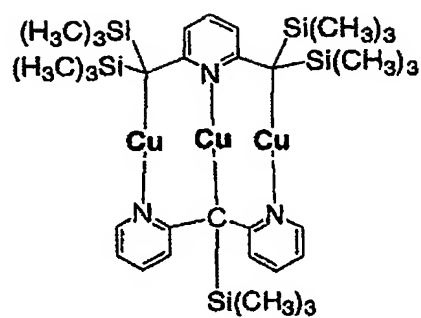
【表 7】

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2601 | E12 | F03 |
| 2602 | E12 | F05 |
| 2603 | E12 | F14 |
| 2604 | E12 | F17 |
| 2605 | E12 | G07 |
| 2606 | E12 | G11 |
| 2607 | E12 | G21 |
| 2608 | E12 | H05 |
| 2609 | E12 | H17 |
| 2610 | E12 | I14 |
| 2611 | E15 | E01 |
| 2612 | E15 | E02 |
| 2613 | E15 | E03 |
| 2614 | E15 | E08 |
| 2615 | E15 | F03 |
| 2616 | E15 | F05 |
| 2617 | E15 | F14 |
| 2618 | E15 | F17 |
| 2619 | F03 | F05 |
| 2620 | F03 | F14 |
| 2621 | F03 | F17 |
| 2622 | F03 | G07 |
| 2623 | F03 | G11 |
| 2624 | F03 | G21 |
| 2625 | F03 | H05 |
| 2626 | F03 | H17 |
| 2627 | F03 | I14 |
| 2628 | F04 | F05 |
| 2629 | F04 | F14 |
| 2630 | F04 | F17 |
| 2631 | F04 | G07 |
| 2632 | F04 | G11 |
| 2633 | F04 | G21 |
| 2634 | F04 | H05 |
| 2635 | F04 | H17 |
| 2636 | F04 | I14 |
| 2637 | F05 | A01 |
| 2638 | F05 | A02 |
| 2639 | F05 | A09 |
| 2640 | F05 | F14 |
| 2641 | F05 | F17 |
| 2642 | F05 | G07 |
| 2643 | F05 | G11 |
| 2644 | F05 | G21 |
| 2645 | F17 | G07 |
| 2646 | G21 | H12 |
| 2647 | I08 | I14 |
| 2648 | I10 | I14 |
| 2649 | I10 | I15 |
| 2650 | I14 | I15 |

| 化合物番号 | A | B |
|-------|-----|-----|
| 2651 | J01 | J02 |
| 2652 | J01 | J03 |
| 2653 | J01 | J07 |
| 2654 | J02 | J07 |
| 2655 | J03 | J04 |
| 2656 | J07 | J08 |
| 2657 | J07 | J10 |

【0055】

【化 17】



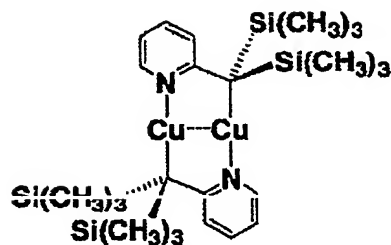
例示化合物 3001

【0056】

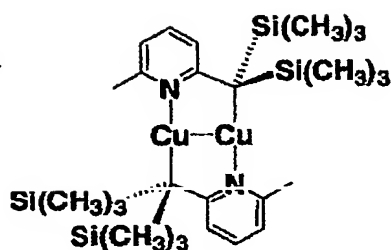
上記具体例のうち、好ましい銅配位化合物の構造式を以下に示す。

【0057】

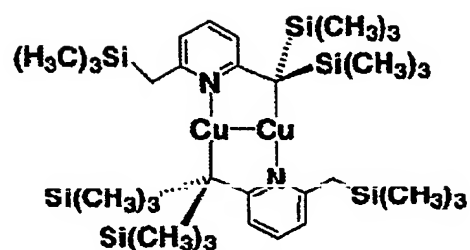
【化18】



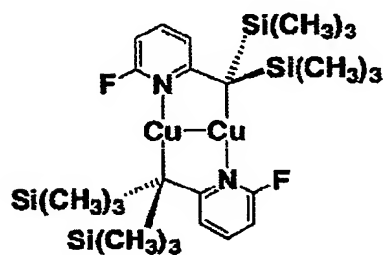
例示化合物 1001



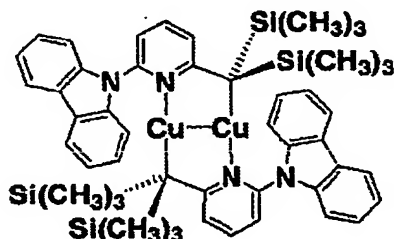
例示化合物 1002



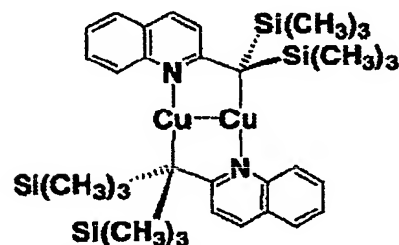
例示化合物 1006



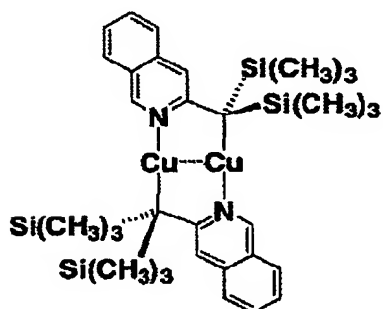
例示化合物 1007



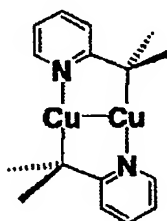
例示化合物 1063



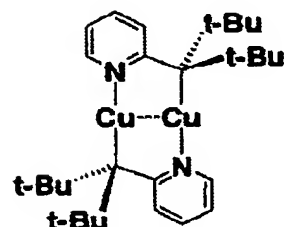
例示化合物 1078



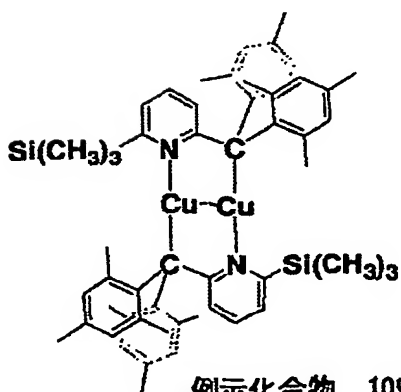
例示化合物 1079



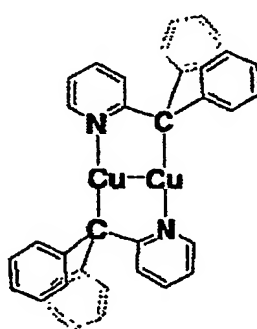
例示化合物 1094



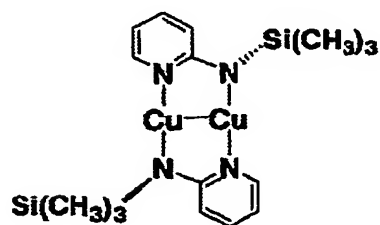
例示化合物 1096



例示化合物 1099



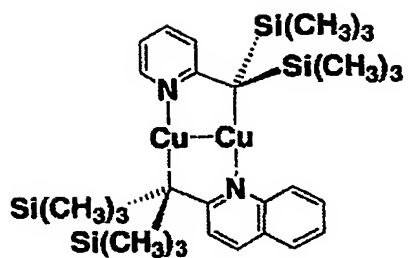
例示化合物 1097



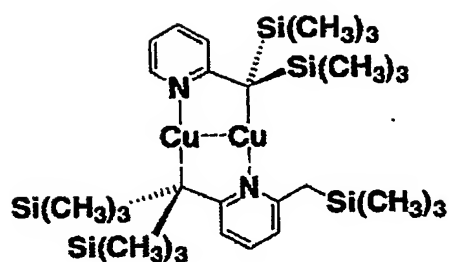
例示化合物 1134

【0058】

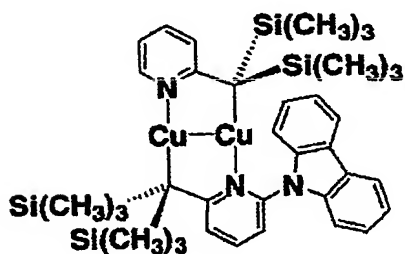
【化19】



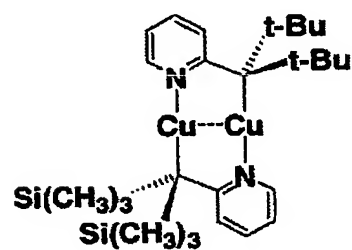
例示化合物 2568



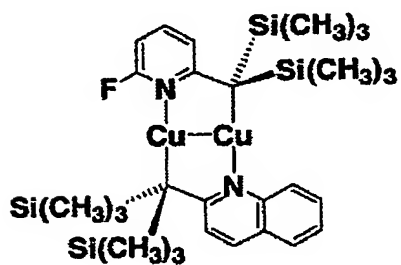
例示化合物 2004



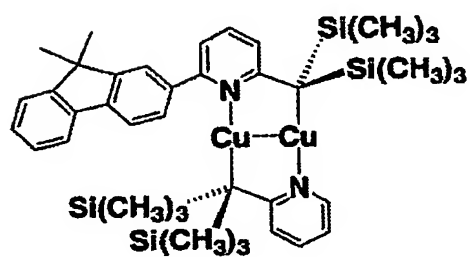
例示化合物 2033



例示化合物 2051



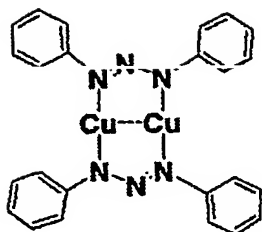
例示化合物 2347



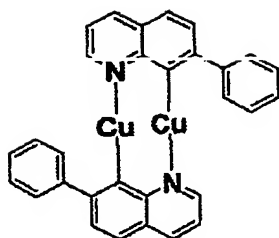
例示化合物 2037

【0059】

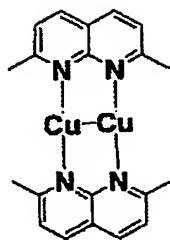
【化20】



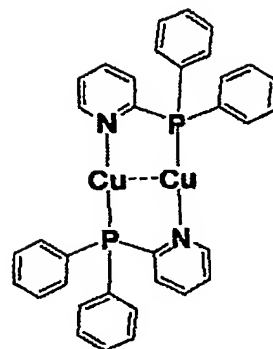
例示化合物 1151



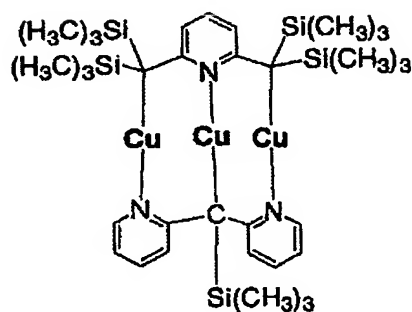
例示化合物 1160



例示化合物 1172



例示化合物 1176



例示化合物 3001

【0060】

これらの銅配位化合物の銅—銅原子間は、多くのものが3.2 Å以下になり、銅原子間に相互作用が存在し銅原子間に結合を有している。上記一般式(1)で示される部分構造式を有する銅配位化合物は、2つの銅原子の両側に2つの銅原子を囲むように2つの2座配位子がある。例えば例示化合物1001を例にとって説明すると、この配位子は、配位子A01を2つ用いたものであり、配位原子はピリジン中の窒素原子とピリジンの隣にある炭素原子である。この配位子が配位化合物中では、2つの銅原子を囲むように回転対称的に配位している。配位子中にある非常に嵩高いトリメチルシリル基は、銅と配位子間の結合を安定化している効果があると考えられる。配位子中に立体的にかさ高い置換基を有することで、熱的な安定性が高くなり、発光材料としてより望ましい。例示化合物1001の分子内の銅原子間距離は、2.41 Åで、強い相互作用をしている。銅原子間距離が3.2 Å以下のものは、銅原子間相互作用が比較的強く、熱安定性や発光特性が優れている。

【0061】

化8に示した芳香族系の置換基を有する配位子を用いた銅配位化合物は、発光材料として発光する機能だけではなく、その芳香環の置換基によって、電荷輸送能も有するようになり、例えば、発光層中にこれらの配位化合物を高濃度で用いる場合には、電荷輸送が可能になるため、より有利になる。また、いくつかの安定なコンフォメーションを持つため、アモルファス性が向上し、結晶化が抑制されるため有機LED素子の耐久性向上のためより望ましい。他の例として、例示化合物2051のように、一方の配位子にはトリメチルシリル基を有し、他方の配位子にはトリメチルシリル基の無い構成も可能である。構造上

対称性を大きく崩して、結晶性を下げ、アモルファス性を向上させることが可能になる。また、例示化合物2054のように、トリメチルシリル基の有無に加えて、共役長の差を設けて励起状態を局在化することで素子の安定性を向上させることも可能である。理由は明らかではないが、発光材料の励起状態を局在化することで、素子の安定性を向上させることができる可能性がある。

【0062】

本発明の発光材料は、前述のように、固体中で良く発光するため、発光層中で、高濃度で用いることができる。しかしながら、配位化合物を同じ配位子で構成する場合、その配位化合物は比較的結晶化しやすく、発光素子として用いる場合、劣化しやすいなど問題が起こる可能性がある。そのため、分子の対称性を落として結晶化を抑制することができる。その例を表3～表7に示した。例えば、例示化合物2033は、一方の配位子にカルバゾール基を配し、もう一方の配位子にはそれがない。このような分子構造を有するものは、アモルファス性が高く、結晶性が低い有機LED素子の発光材料には、より望ましい。

【0063】

本発明の銅配位化合物の非常に強い発光特性は本発明者らが初めて観測し、その発光素子への応用を開示したものである。その発光メカニズムはこれまで明らかにされていない。これ以下に示す発光に関する記述に関しては、我々の発光メカニズムに関する一つのモデルである。

【0064】

本発明の銅配位化合物の発光性の最低励起状態は、以下の3種類が考えられ、または、その混合状態と考えられる。

(1) MLC T (metal-to-ligand-charge-transfer)
励起状態

(2) 金属中心励起状態

(3) 配位子中心 ($\pi\pi^*$) 励起状態

【0065】

励起状態はその寿命が短く、その状態は複雑なので、実験的に各々の配位化合物について詳しく特定するのは難しい。

【0066】

前に述べたように、本発明の多くの銅配位化合物は、分子内銅原子間隔は短く、3.2 Å以下である。銅原子のファンデルワース半径の2倍は、2.8 Åであり、銅原子間は相互作用をして新たな分子軌道を形成していると考えられる。この銅原子間の相互作用により生成された軌道は、単独のCu原子の被占軌道よりエネルギー的に高くなり、HOMO軌道（最高被占軌道）になりうる。

【0067】

また、本発明の配位化合物の多くは、例えば、上記一般式(2)で示されるように、電子欠乏性の複素環であるピリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、キノリン、イソキノリン、ピラゾール、アザキノリン、アザイソキノリン環などがN原子を介して直接銅原子に配位している。励起状態になるとき、基底状態から、電子が上位の軌道に遷移するが、上記複素環は、電子欠乏性のため、電子を受け入れやすい。そのため、銅原子から励起遷移時に複素環が電子を受け入れる場合が多い。これら、複素環を有する配位子が励起遷移時に銅原子から電子を受け入れる。励起遷移時に、金属から配位子に電子が電荷移動する場合に、その励起状態をMLC T励起状態と呼ぶ。本発明のCu配位化合物におけるMLC T励起状態は以下のように考えられる。すなわち、2つの銅原子の相互作用によってできる軌道が分子のHOMO軌道となり、そのHOMO軌道から配位子への電荷移動するMLC T励起状態である。

【0068】

また、本発明の配位化合物の中で複素環がない分子や、複素環があっても励起遷移時に電子を受け入れない場合には、(2) 金属中心励起状態となる。また、他に(3) 配位子

中心 ($\pi\pi^*$) 励起状態も考えられる。

【0069】

発光は、一般に最低励起状態から発光する。最低励起状態は、いろいろな励起状態が「混合」されているため、最低励起状態がどの励起状態が主たるものであるかで、その発光特性が決定される。

【0070】

M L C T 励起状態の場合、配位子を変更することで発光エネルギーが変化すればこれらが主たる励起状態であると判断できる。分子内銅原子間距離が 3.2 Å 程度以下であれば、金属間相互作用による結合軌道ができていますので、その軌道をからの M L C T 遷移と考えることができる。銅原子間距離など分子構造は、X 線結晶構造解析により決定することができる。

【0071】

本発明の銅配位化合物の発光波長は、配位子を変化させることで調整可能である。例えば、化 7 に示す配位子のように、ピリジン環に電子供与または吸引基を用いることで波長が調整できる。また、化 8, 9 に示すように複素環中の N 原子数や、複素環の環構造を変化させることもできる。さらに、化 10, 11 に示すように芳香環の共役長を変化させて、発光波長を調整することも可能である。

【0072】

本発明の銅配位化合物の発光寿命は、固体状態で $0.1\mu\text{s} \sim 100\mu\text{s}$ であり、3 重項励起状態を経由した発光であり、遅延蛍光または燐光である。フォトルミネッセンスの発光収率は 1 ~ 60 % 程度で、強い発光を示す。

【0073】

高発光効率のためには、基底状態と励起状態の構造変化を抑制するような配位子構造にすることが重要である。本発明の銅配位化合物は、溶液に比べ固体中では上記構造変化が抑制されるため、強い発光が得られると考えられる。これが銅配位化合物が、固体でよく発光する一つの理由である。これまで用いられてきたアルミキノリノール誘導体、クマリン誘導体、キナクリドン誘導体などは、溶液中で非常に強い発光が得られ、その強発光特性がそのまま固体分散中でも保持され、この特性が有機 E L 素子においても有効に働き、素子の高発光効率を得られていたが、本発明の C u 配位化合物では溶液中の発光に比べて固体中の発光は非常に強い。本発明者らはこの特性に着眼し有機 E L 素子の高効率で安定発光に有用であることを見出した。

【0074】

本発明の C u 配位化合物は有機 E L 素子の発光材料に有用である。高い発光効率を有することは言うまでもなく、真空蒸着プロセスや溶液にして塗布するスピンコートプロセスや、インクジェットノズルを用いた塗布方式にも適する。素子作成工程における分解などのダメージがなく安定した素子作成が可能になる。

【0075】

次に、本発明の発光素子について説明する。本発明の発光素子は、上記発光材料が発光層に含まれることが好ましい。

【0076】

本発明の有機 E L 素子の基本的な構成を図 1 (a) ~ (e) に示した。

【0077】

図 1 に示したように、一般に有機 E L 素子は、透明基板 15 上の透明電極 14 と金属電極 11 とに挟持された単層または複数層の有機膜層から構成される。

【0078】

図 1 (a) は、最も単純な構成で、有機層が発光層 12 のみからなるものである。

【0079】

図 1 (b) と (c) は、有機層が 2 層からなり、それぞれ発光層 12 とホール輸送層 13 と、発光層 12 と電子輸送層 16 からなる。

【0080】

図 1 (d) は、有機層が 3 層からなりホール輸送層 13、発光層 12 および電子輸送層 16 からなるものである。

【0081】

図 1 (e) は、有機層が 4 層からなりホール輸送層 13、発光層 12、励起子拡散防止層 17 および電子輸送層 16 からなるものである。

【0082】

発光層 12 には、電子輸送性と発光特性を有するアルミキノリノール錯体など（代表例は、以下に示す Alq）が用いられる。

【0083】

発光層には、キャリア輸送材料中に本発明の発光性銅配位化合物を混入するゲストホストタイプや、その発光性銅配位化合物のみを 100% で用いる方法や、その発光性銅配位化合物が主成分で、少量の添加剤（キャリア輸送材料や結晶化防止材料など）を加えることもできる。さらに、ゲストホストタイプの中でも、ゲストに電子輸送性とホール輸送性の 2 つのキャリア輸送材料を用い、その中に発光性銅配位化合物を添加することもできる。従って、本発明の発光層は、性能の向上や生産性を考慮して、1 成分または 2 成分以上の材料から構成することができる。

【0084】

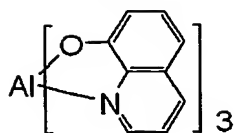
また、ホール輸送層 13 には、例えばトリフェニルアミン誘導体（代表例は、以下に示す α NPD）が主に用いられる。また高分子の場合、PVK が用いられる。PVK は、主にホール輸送性であり、PVK 自体が青色の EL 発光を示す。

【0085】

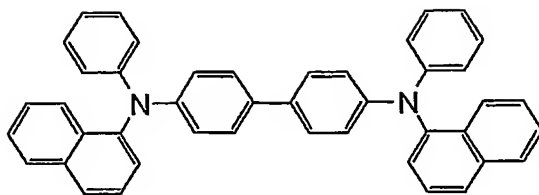
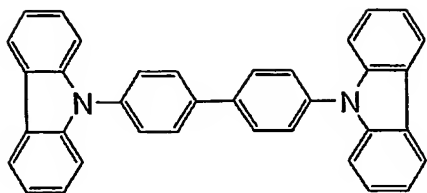
電子輸送層 16 としては、例えば、オキサジアゾール誘導体など、または、以下に示す Alq、Bphen や BCP を用いることができる。

【0086】

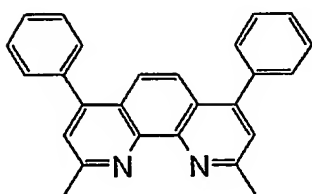
【化 2 1】



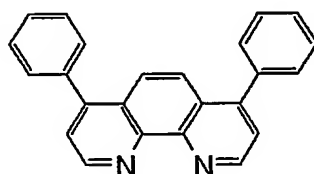
Alq

 α -NPD

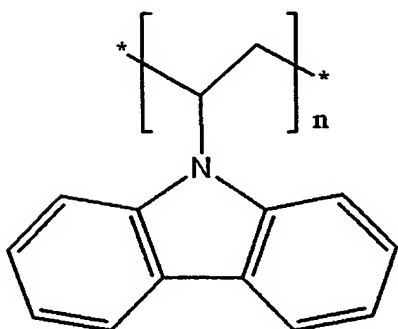
CBP



BCP



BPhen



PVK

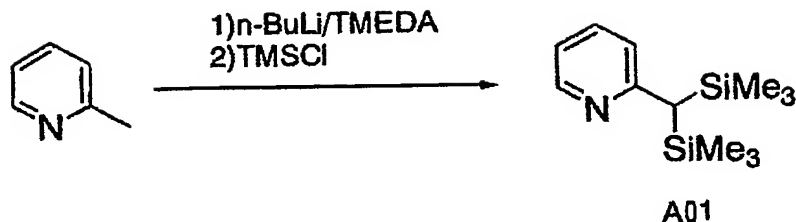
【実施例】

【0087】

<製造例1(例示化合物1001)の製造>

【0088】

【化22】

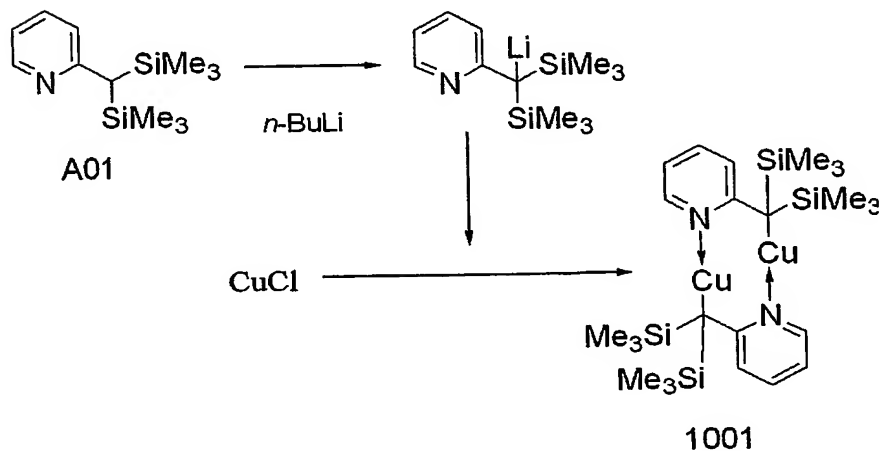


【0089】

1000ml フラスコに TMEDA 32.6g (281mmol) をシクロヘキサン 150ml に投入し、 -30°C に冷却した。この溶液に *n*-ブチルリチウム 345ml (2.4M ヘキサン溶液) をキャニラーを用いて滴下し、生成した懸濁液に 2-メチルピリジン 26.1g (281mmol) を滴下漏斗にて滴下した。その後、反応液を昇温し、室温で 10 分撹拌を行った。その後、再び -30°C まで冷却した後、塩化トリメチルシリル 91.5g (843mmol) を滴下漏斗にて滴下した。15 分撹拌後、室温まで昇温し、2 時間撹拌を行った。反応後、水にて処理を行い、ヘキサン (1L \times 3) で抽出を行った。有機層を飽和食塩水で洗浄、硫酸マグネシウムにて乾燥後、溶媒を留去し、粗精製物を得た。これをカラムクロマトグラフィー (酢酸エチル/ヘキサン=1/10) にて精製し、減圧蒸留にて化合物 A01 を 13.0g (収率 19%) 得た。

【0090】

【化23】



【0091】

100ml の 2 つ口フラスコに 2-(ビス(トリメチルシリル)メチル)ピリジン (化合物 A01) 952mg (4mmol), 完全に脱気された脱水テトラヒドロフラン 20ml を入れ、窒素気流下 -20°C で撹拌しながら ノルマルブチルリチウム 2.5ml (4mmol, 1.6M ヘキサン溶液) を滴下した。

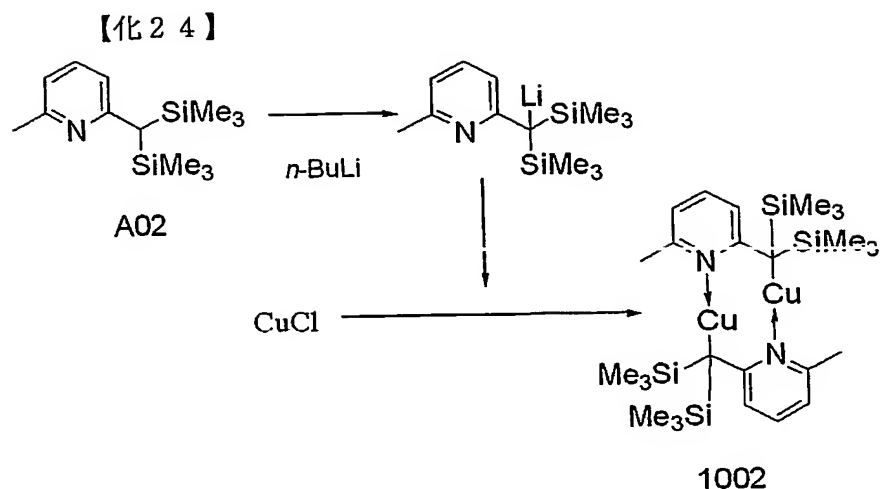
【0092】

その後、室温まで徐々に昇温し、室温にした後、塩化銅 (I) 496mg (4mmol) を加えた後、15 分撹拌した。反応終了後、溶媒を窒素下にて留去を行い、反応物に脱水、脱気したヘキサンを 50ml 加えて撹拌した後、窒素下にて不溶物の濾過を行った。濾液を窒素下にて濃縮を行った後、得られた固形物を昇華精製にて精製を行い、例示化合物 1001 を 350mg (収率 29%) を得た。

【0093】

<製造例 2 (例示化合物 1002) の製造>

【0094】



【0095】

100 ml の 2 つ口フラスコに 2-(ビストリメチルシリルメチル)-6-メチルピリジン (化合物 A02) 1006 mg (4 mmol), 完全に脱気された脱水テトラヒドロフラン 20 ml を入れ、窒素気流下 -20 度で攪拌しながらノルマルブチルリチウム 2.5 ml (4 mmol、1.6 M ヘキサン溶液) を滴下した。

【0096】

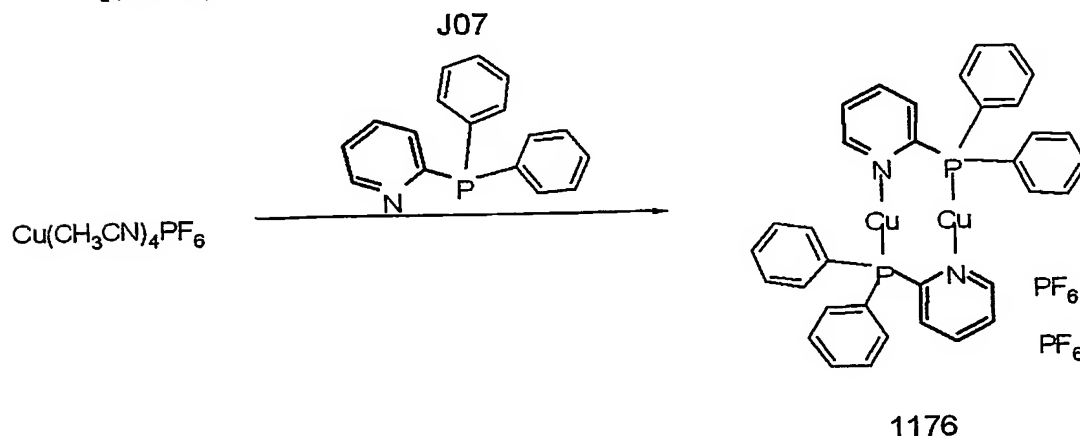
その後、室温まで徐々に昇温し、室温にした後、塩化銅 (I) 496 mg (4 mmol) を加えた後、15 分攪拌した。反応終了後、溶媒を窒素下にて留去を行い、反応物に脱水、脱気したヘキサンを 50 ml 加えて攪拌した後、窒素下にて不溶物の濾過を行った。濾液を窒素下にて濃縮を行った後、得られた固形物を昇華精製にて精製を行い、例示化合物 1002 を 390 mg (収率 31%) を得た。

【0097】

<製造例 3 (例示化合物 1176) の製造>

【0098】

【化 2 5】



【0099】

100 ml の 2 つ口フラスコにテトラキス (アセトニトリル) 銅 (I) ヘキサフルオロリン酸塩 186 mg (0.5 mmol), 脱水トルエン 20 ml を入れ、窒素気流下 2-ジフェニルフォスファニルピリジン (化合物 J07) 132 mg (0.5 mmol) を投入した。その後、1 時間、攪拌した。反応終了後、溶媒留去を行い、クロロホルム/メタノールにて再結晶を行い、例示化合物 1176 を 159 mg (収率 50%) を得た。

【0100】

<化合物の発光特性>

製造例 1～3 で製造した化合物の粉末状態での発光特性の測定を行った。結果を表 8 に示す。また、代表例として例示化合物 1001 の発光スペクトルを図 2 に示す。

【0101】

【表 8】

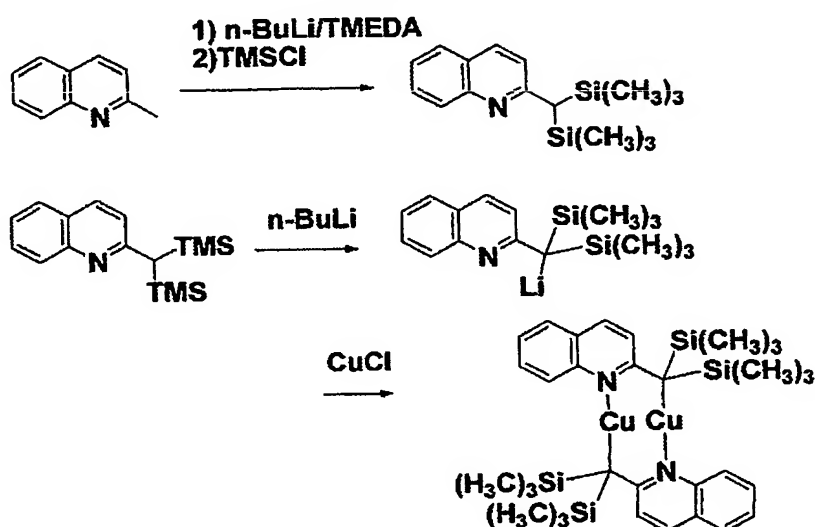
| 例示化合物 | 発光波長 (nm) | 半値幅 (nm) |
|-------|-----------|----------|
| 1001 | 519 | 67 |
| 1002 | 525 | 70 |
| 1176 | 514 | 91 |

【0102】

<製造例 4 (例示化合物 1078) の製造>

【0103】

【化 26】



【0104】

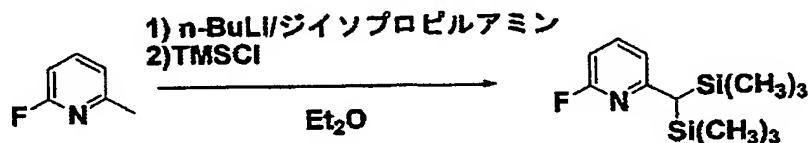
製造例 1 に示した方法と同様の合成法を用い、例示化合物 1078 を合成した (収率 10%)。化合物の同定には、元素分析及び X 線結晶解析を用いた。図 3 に、本化合物の固体状態での発光スペクトルを示す。発光ピーク波長は 577 nm・半値幅 91 nm の強い橙色発光が観測された。

【0105】

<製造例 5 (例示化合物 1007) の製造>

【0106】

【化 27】



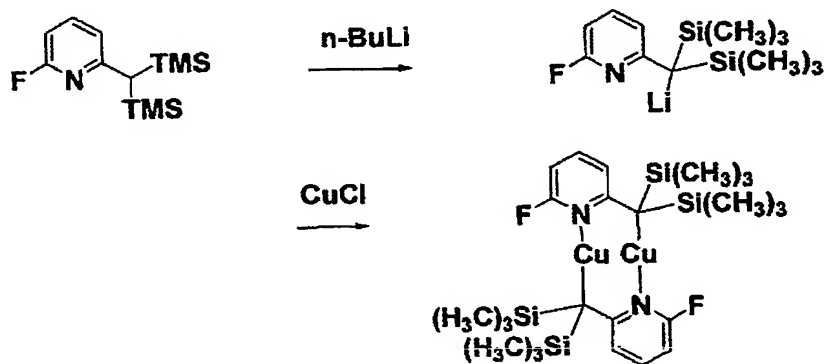
【0107】

300 ml 反応器にジイソプロピルアミン (14 ml, 99 mmol)、ジエチルエーテル (100 ml) を加え -40℃ に冷却した。この溶液に n-ブチルリチウム 2.44 M ヘキサン溶液 (41 ml, 99 mmol) を滴下した。この溶液を攪拌しながら 0℃ まで昇温後、-78℃ に冷却した後、2-フルオロ-6-メチルピリジン (5.0 g, 45

mmol)を加えた。15分攪拌後、トリメチルシリルクロリド(12.6ml, 99mmol)をゆっくり滴下した後、昇温して室温で18時間攪拌した。この混合液に市水を加え、さらにヘキサン(150ml)を加えて有機層と水層を分けた後、水層をヘキサンで抽出し有機層を集め、飽和食塩水で洗浄しMgSO₄で乾燥後、この溶液を濃縮し淡褐色の液体である配位子を得た。

【0108】

【化28】



【0109】

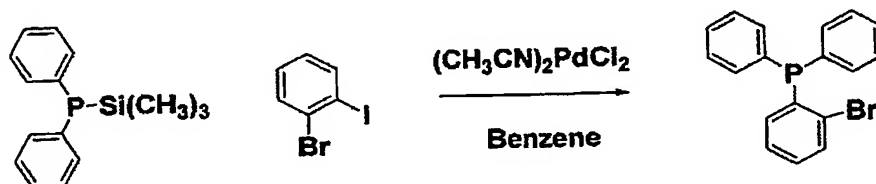
その後、製造例1と同様にして例示化合物1007を得た(収率20%)。化合物の同定には、元素分析及びX線結晶解析を用いた。図4に、本化合物の固体状態での発光スペクトルを示す。発光ピーク波長は504nm・半値幅55nmの強い緑色発光が観測された。

【0110】

<製造例6(例示化合物1182)の製造>

【0111】

【化29】

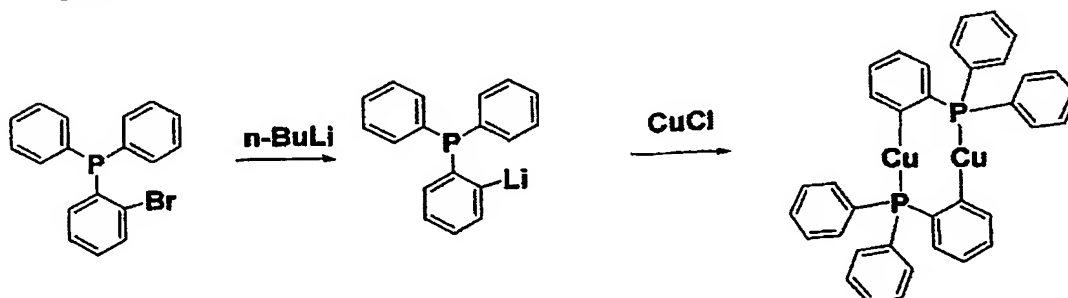


【0112】

ベンゼン溶媒中でトリメチルシリルジフェニルホスフィンと1-ヨード-2-ブロモベンゼンをパラジウム触媒存在下で反応させることにより配位子を得た。

【0113】

【化30】



【0114】

その後、製造例 1 と同様にして例示化合物 1182 を得た（収率 12 %）。化合物の同定には、元素分析及び X 線結晶解析を用いた。図 5 に、本化合物の固体状態での発光スペクトルを示す。発光ピーク波長は 705 nm の赤色発光が観測された。

【0115】

<実施例 1, 2>

本実施例では、素子構成として、図 1 (d) に示す有機層が 3 層の素子を使用した。

【0116】

ガラス基板（透明基板 15）上に 100 nm の ITO（透明電極 14）をパターンニングして、対向する電極面積が 3 mm² になるようにした。その ITO 基板上に、以下の有機層と電極層を 10⁻⁴ Pa の真空チャンバー内で抵抗加熱による真空蒸着し、連続製膜した。発光層 12 は 40 nm（実施例 1）、20 nm（実施例 2）の 2 種類を作製した。

ホール輸送層 13（40 nm）：化合物 FL1

発光層 12（40 nm, 20 nm）：CBP／例示化合物 1001（重量比 10 重量%）

電子輸送層 16（50 nm）：BPhen

金属電極層 1（1 nm）：KF

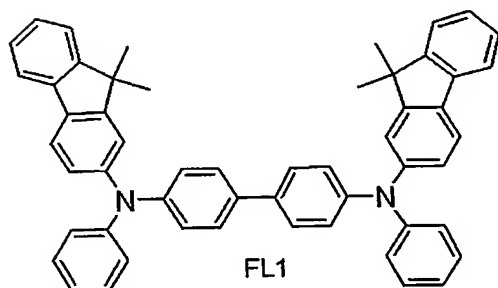
金属電極層 2（100 nm）：Al

【0117】

尚、化合物 FL1 の構造式を以下に示す。

【0118】

【化 31】



【0119】

<実施例 3>

本実施例では、素子構成として、図 1 (d) に示す有機層が 3 層の素子を使用した。

【0120】

実施例 1 と同様にして作製した ITO 基板上に、ホール輸送層 13 として、バイエル社製の PEDOT（有機 EL 用）を 40 nm の膜厚に 1000 rpm（20 秒）でスピニングコートで塗布し、120℃の真空チャンバーで 1 時間乾燥した。

【0121】

その上に、以下の溶液を用いて、窒素雰囲気下で 2000 rpm、20 秒間でスピニングコートすることで、50 nm の膜厚の発光層 12 を形成し、ホール輸送層 13 製膜時と同じ条件で乾燥した。

脱水クロロベンゼン：10 g

ポリビニルカルバゾール（平均分子量 9600）：92 mg

例示化合物 1001：8 mg

【0122】

この基板を真空蒸着チャンバーに装着して、電子輸送層 16 として、BPhen を 40 nm の膜厚に真空蒸着製膜した。

【0123】

次に、以下のような構成の陰極（金属電極 11）を形成した。

金属電極層 1（15 nm）：AlLi 合金（Li 含有量 1.8 重量%）

金属電極層 2（100 nm）：Al

【0124】

<素子の特性>

金属電極11をマイナス、透明電極14をプラスにしてDC電圧を印加して素子特性を評価した。

【0125】

電圧電流特性は、良好な整流性を示した。発光スペクトルと発光強度は、トプコン社製、スペクトル測定機SR1及びBM7で測定した。電圧印加時の電流値は、ヒューレッドパッカード社製の4140Bd測定した。発光輝度と電流測定値から、発光効率cd/Aを計算した。結果を表9に示す。

【0126】

【表9】

| 実施例 | 発光波長(nm) | 300cd | | 600cd | |
|-----|----------|-------|------|-------|------|
| | | cd/A | lm/w | cd/A | Lm/W |
| 1 | 535 | 20.7 | 10.1 | 18.1 | 9.2 |
| 2 | 535 | 24.9 | 17.8 | 21.4 | 14.5 |
| 3 | 540 | 11.5 | 5.2 | 10.1 | 4.3 |

【0127】

EL発光は、300、600cd/cm²で発光させた時、良好な発光を示した。

【0128】

実施例1において、外部量子効率7.5%であり、三重項励起状態を経由した発光の利点を生かした高効率発光素子を得ることができた。また、実施例1及び2の素子を100時間通電してEL発光をさせた時、安定な発光が得られることを確認した。

【0129】

<実施例4, 5>

発光層の例示化合物1001の濃度を50重量%（実施例4）、100重量%、つまり例示化合物1001のみ（実施例5）とした以外は、実施例2と同様にして素子を作成した。600cd/m²の輝度のときの効率を表10に示す。

【0130】

【表10】

| | 発光波長(nm) | cd/A | lm/W |
|------|----------|------|------|
| 実施例4 | 540 | 19.3 | 13.2 |
| 実施例5 | 550 | 19.0 | 12.0 |

【0131】

実施例2（発光層の例示化合物1001の濃度が10重量%のもの）と比較して同等の効率を得られていることから、例示化合物1001は濃度を高くしても効率が落ちることがない濃度消光が抑制された発光材料であることが判る。

【0132】

尚、発光は300cd/m²で連続発光させても安定な発光を示した。

【0133】

<実施例6~8>

例示化合物1001に替えて例示化合物1007を用いた以外は実施例1、2、5と同様にして素子を作成した。600cd/m²の輝度のときの効率を表11に示す。

【0134】

【表 11】

| | 発光波長 (nm) | cd/A | lm/W |
|------|-----------|------|------|
| 実施例6 | 505 | 10.2 | 6.8 |
| 実施例7 | 505 | 15.0 | 11.0 |
| 実施例8 | 515 | 12.0 | 8.2 |

【0135】

実施例 6, 7 の素子は高効率発光を示し、例示化合物 1007 が優れた発光ドーパントであることが判る。また、例示化合物 1007 の 100% 膜の発光層を用いた実施例 8 の素子でも良好な効率が得られていることから、例示化合物 1007 は濃度消光が抑制された発光材料であることが判る。

【0136】

尚、発光は 300 cd/m^2 で連続発光させても安定な発光を示した。

【0137】

<実施例 9>

例示化合物 1001 を例示化合物 1176 に変更した以外は実施例 3 と同様にして素子を作成した。 600 cd/m^2 の輝度のときの効率を表 12 に示す。

【0138】

【表 12】

| | 発光波長 (nm) | cd/A | lm/W |
|------|-----------|------|------|
| 実施例9 | 520 | 4.3 | 2.0 |

【0139】

高効率発光が確認され、また 300 cd/m^2 で連続発光させても安定な発光を示した。

【図面の簡単な説明】

【0140】

【図 1】 本発明の発光素子の一例を示す断面図である。

【図 2】 例示化合物 1001 の発光スペクトルを示す図である。

【図 3】 例示化合物 1078 の発光スペクトルを示す図である。

【図 4】 例示化合物 1007 の発光スペクトルを示す図である。

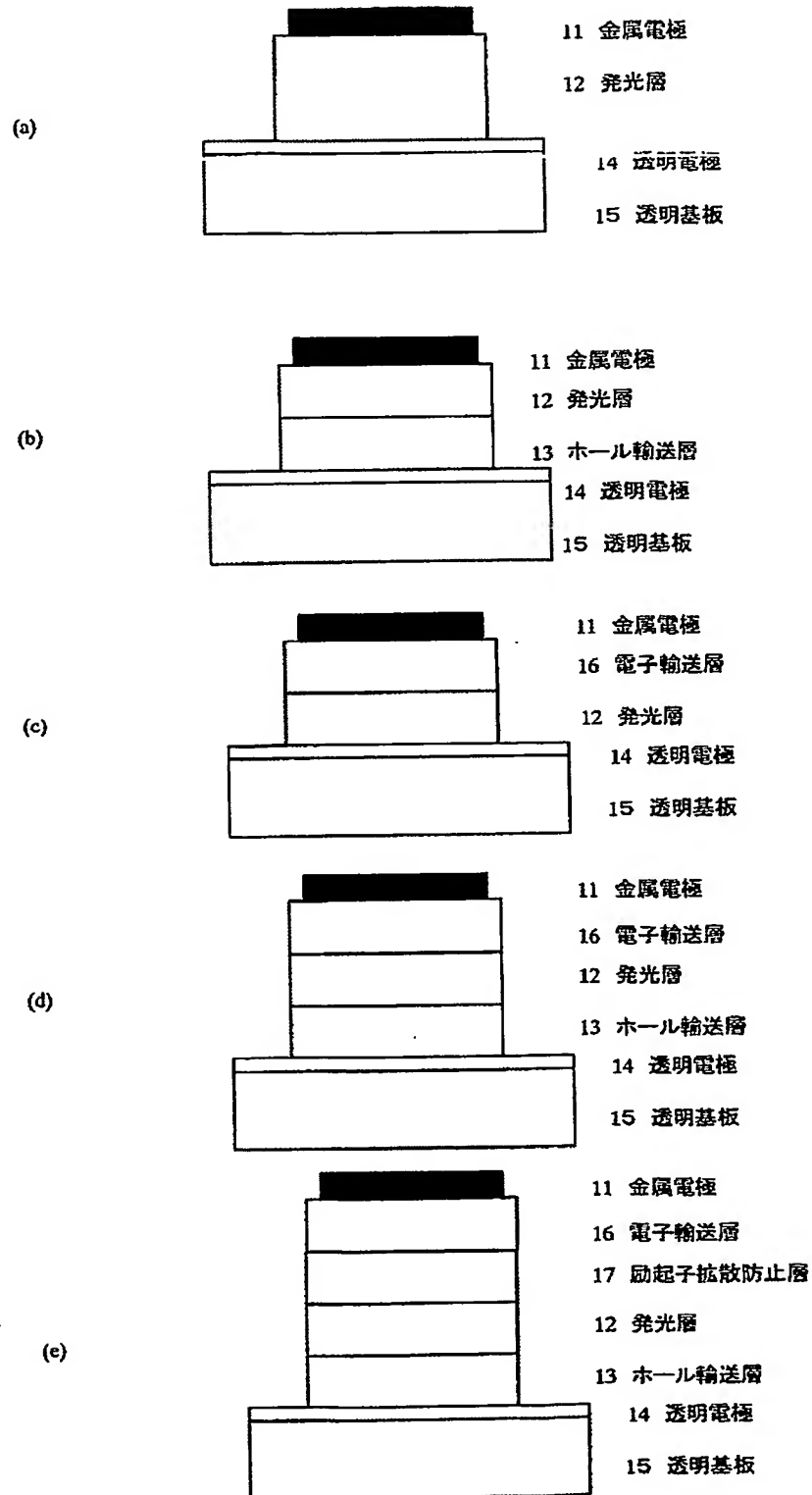
【図 5】 例示化合物 1182 の発光スペクトルを示す図である。

【符号の説明】

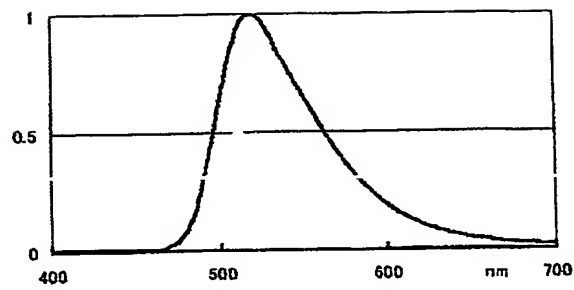
【0141】

- 11 金属電極
- 12 発光層
- 13 ホール輸送層
- 14 透明電極
- 15 透明基板
- 16 電子輸送層
- 17 励起子拡散防止層

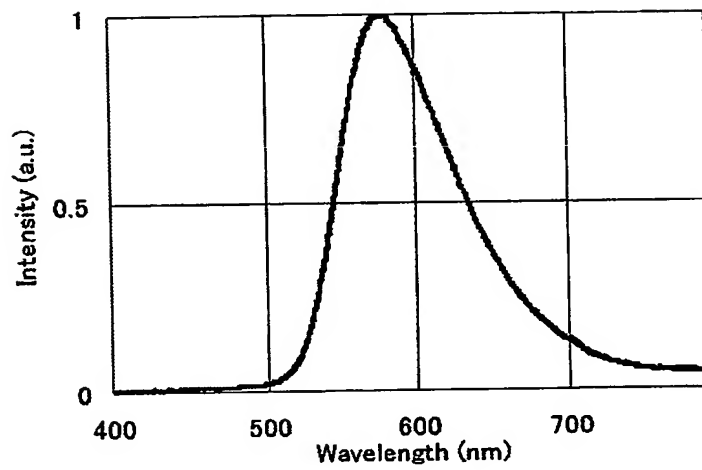
【書類名】 図面
【図 1】



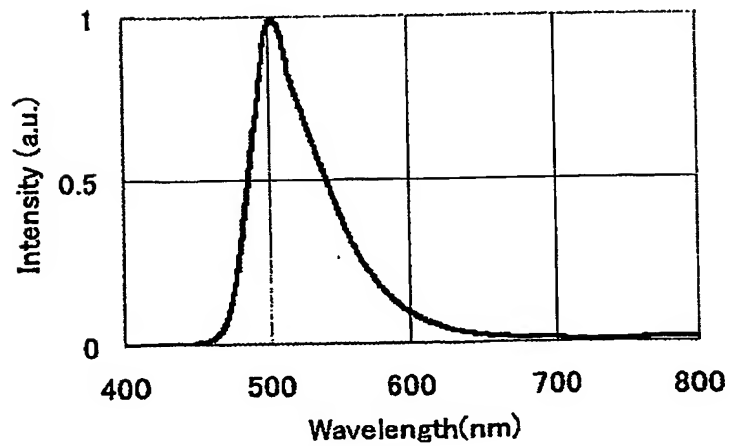
【図 2】



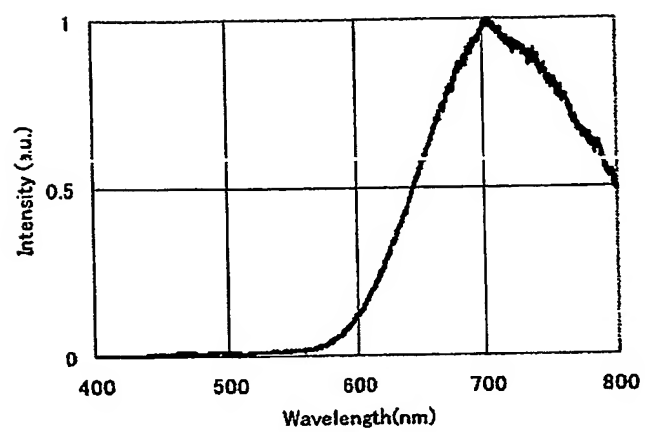
【図 3】



【図 4】



【図 5】



【書類名】 要約書

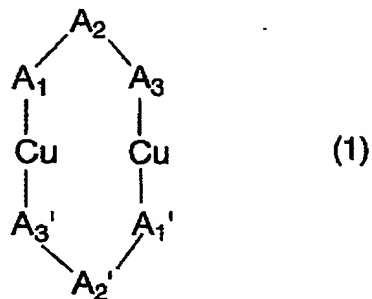
【要約】

【課題】 高発光効率・高安定性・低コストである発光材料を用いた発光素子を提供する

。

【解決手段】 下記一般式(1)で示される部分構造式を有する2核の銅配位化合物を発光材料として用いる発光素子。

【化1】



[式中、Cuは銅イオンであり、A₁～A₃とA₁'～A₃'は窒素、炭素、りん原子から選ばれる。]

【選択図】

図1

認定・付加情報

| | |
|---------|----------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2004-298501 |
| 受付番号 | 50401743360 |
| 書類名 | 特許願 |
| 担当官 | 第四担当上席 0093 |
| 作成日 | 平成16年10月18日 |

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

| | |
|----------|-------------------|
| 【識別番号】 | 000001007 |
| 【住所又は居所】 | 東京都大田区下丸子3丁目30番2号 |
| 【氏名又は名称】 | キャノン株式会社 |

【代理人】

申請人

| | |
|----------|---------------------------------|
| 【識別番号】 | 100096828 |
| 【住所又は居所】 | 東京都千代田区有楽町1丁目4番1号 三信ビル 229号室 |
| 【氏名又は名称】 | 渡辺 敬介 |

【選任した代理人】

| | |
|----------|---------------------------------|
| 【識別番号】 | 100110870 |
| 【住所又は居所】 | 東京都千代田区有楽町1丁目4番1号 三信ビル 229号室 |
| 【氏名又は名称】 | 山口 芳広 |

特願 2 0 0 4 - 2 9 8 5 0 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 1 0 0 7]

| | |
|----------|--------------------------|
| i. 変更年月日 | 1 9 9 0 年 8 月 3 0 日 |
| [変更理由] | 新規登録 |
| 住 所 | 東京都大田区下丸子 3 丁目 3 0 番 2 号 |
| 氏 名 | キャノン株式会社 |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.